Eine lasergestützte Apparatur für Experimente zum magnetischen Lineardichroismus in der Photoemission

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
des Department Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Roland Kalms
aus Bielefeld

Hamburg
2010

Gutachter der Dissertation:	Prof. Dr. Markus Drescher
	PD Dr. Michael Martins
Gutachter der Disputation:	Prof. Dr. Markus Drescher
	Prof. Dr. Wolfgang Hansen
Datum der Disputation:	20. Juli 2010
Vorsitzende des Prüfungsausschusses:	Prof. Dr. Caren Hagner
Vorsitzender des Promotionsausschusses:	Prof. Dr. Jochen Bartels
Dekan der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften:	Prof. Dr. Heinrich Graener

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird eine lasergestützte Apparatur zur Messung des magnetischen Lineardichroismus in der Photoemission vorgestellt. Der Aufbau besteht aus einem Femtosekundenlasersystem, einer XUV-Laborquelle und einem UHV-Rezipienten für die Photoemissionsspektroskopie an (magnetisierten) Festkörperoberflächen. Die Infrarotpulse des Lasersystems werden in ein Edelgasmedium fokussiert, in dem hohe Harmonische der Fundamentalfrequenz des anregenden elektrischen Laserfeldes generiert werden. Die emittierte Strahlung kann mit Hilfe eines XUV-Spektrometers spektral charakterisiert und auf einen maximalen Photonenfluss im energetischen Transmissionsbereich der HHG-Beamline um die 90 eV optimiert werden. Nach der Selektion einer einzelnen Harmonischen durch Reflexion an einem Gradienten-Multilagenspiegel trifft die XUV-Strahlung auf einen Ellipsoidspiegel, der diese in der Messkammer auf die Probe fokussiert. Durch ein Abrastern der Probenoberfläche mit einem Scannertisch ist dort die Aufnahme ortsaufgelöster Photoelektronenspektren mit einem Flugzeitspektrometer möglich. In einer Präparationskammer mit Ionenkanone und Elektronenstrahlverdampfer können eine in-situ Oberflächenreinigung und das Aufdampfen von Eisenfilmen durchgeführt werden, die sich durch einen Magnetfeldpuls remanent magnetisieren lassen. Die hier vorgestellten statischen Messungen der Festkörperspektren und des magnetischen Lineardichroismus in der Winkelverteilung der Photoelektronen an einer Laborquelle stellen eine Ergänzung zu den Untersuchungen an beschleunigerbasierten XUV-Quellen dar. Die aufgebaute und an Modellsystemen getestete Apparatur bildet die Grundlage für zukünftige Anrege-Abfrage-Experimente, so dass die mit Harmonischenquellen erreichbare Zeitauflösung bis in den Attosekundenbereich auch zur Messung magnetischer Dynamik genutzt werden kann. Zusätzlich zu der Elektronenspektroskopie wurde im Rahmen dieser Dissertationsarbeit eine rein optische Methode basierend auf dem nichtlinearen magneto-optischen Kerr-Effekt zur Detektion des Oberflächenmagnetismus implementiert.

Abstract

A laser-based apparatus for measuring the magnetic linear dichroism in photoemission is presented in this dissertation. The set-up consists of a femtosecond laser system, a laboratory XUV source and a UHV recipient for photoemission spectroscopy on (magnetized) samples. The infrared laser pulses are focussed into a gaseous medium (e.g. Neon) where high harmonics of the fundamental laser frequency are generated. The emitted radiation is spectrally characterized via a grating spectrometer and optimized concerning the photon flux in the transmission range of the beamline around 90 eV. After a single high harmonic is selected with a gradient multilayer mirror, an ellipsoidal mirror focuses the XUV light onto the sample in the measurement chamber. Spatially resolved photoelectron spectra can there be measured with a time-of-flight spectrometer by scanning the sample surface with a motorized translation stage. In a preparation chamber equipped with an ion gun and an electron beam evaporator the sample surfaces are cleaned, and the in-situ preparation of iron films is possible. Additionally, the iron layer can be remanently magnetized with a magnetic field pulse. The static measurements of the solid state spectra and the magnetic linear dichroism in the angular distribution of the photoelectrons presented in this dissertation complement the usual investigations at accelerator-based XUV sources. The constructed and tested apparatus is the basis for future pump-probe experiments which can exploit the temporal resolution down to the attosecond region accessible with high-harmonic sources for measuring magnetization dynamics. In addition to the electron spectroscopy, an all optical method for detecting the surface magnetism based on the nonlinear magneto-optic Kerr effect has been implemented.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Theoretische Grundlagen **6**

2.1 Gauß-Strahlen 6

2.2 SHG an Oberflächen 10

2.3 Erzeugung hoher Harmonischer 14

2.3.1 Spektrale Eigenschaften der Strahlung 14

2.3.2 3-Stufen-Modell 15

2.3.3 Propagationseffekte und Phasenanpassung 18

2.4 Photoemissionsspektroskopie 23

2.4.1 3-Stufen-Prozess der Photoemission 23

2.4.2 Untergrundabzug 25

2.5 MLDAD an der Fe 3p-Kante 28

2.5.1 Ein-Elektronen-Grundzustandsmodell 28

2.5.2 Winkel- und Energieabhängigkeit 33

3 Experimenteller Aufbau **36**

3.1 Femtosekundenlasersystem 36

3.2 SHG an Oberflächen 39

3.3 XUV-Laborquelle 41

3.3.1 Opt. Elemente und Detektoren für den XUV-Spektralbereich . 41

3.3.2 Harmonischenerzeugung und Beamline 46

3.4 Dichroismus-Experiment 50

3.4.1 Gestell und Vakuumsystem 50

3.4.2 Spiegelkammer 52

3.4.3 Experimentierkammer 54

3.4.4 Probenhandhabung 61

4 Messdaten und Auswertung **63**
4.1 Charakterisierung des Laserstrahls 63
4.2 SHG an Oberflächen 66
4.3 Charakterisierung der XUV-Quelle 68
4.3.1 Strahlprofil 68
4.3.2 Spektrale Eigenschaften 70
4.3.3 Fokussierbarkeit 77
4.4 Photoemissionsspektroskopie 80
4.5 MLDAD an der Fe 3p-Kante 88

5 Zusammenfassung und Ausblick **95**

A Alternatives Probenhalterdesign **98**

Literaturverzeichnis **100**

Abkürzungen **113**

Abbildungsverzeichnis

2.1 Gauß-Strahl 6
2.2 SHG-Geometrie 11
2.3 HH-Spektrum (schematisch) 15
2.4 3-Stufen-Modell der HHG 16
2.5 3-Stufen-Prozess der Photoemission, Elektronenaustrittstiefe 24
2.6 Vergleich verschiedener Methoden des Untergrundabzugs 27
2.7 Messgeometrie des MLDAD-Experiments 29
2.8 Energetische Positionen der P-Unterniveaus und quantenmechanische Darstellung 30
2.9 Histogrammdarstellung des MLDAD und Asymmetrie 32
2.10 Energie- und Winkelabhängigkeit des MLDAD 35

3.1 Aufbau des Femtosekundenlasersystems 36
3.2 Gesamtaufbau 38
3.3 SHG-Aufbau 39
3.4 Multilagenspiegel und Reflexionsgitter (schematisch) 44
3.5 MCP-Phosphorschirm-Detektor (schematisch) 45
3.6 Aufbau der HHG-Beamline 46
3.7 Gittereffizienz und Filtertransmission 47
3.8 Reflektivität des Multilagenspiegels 48
3.9 Konstruktionsansicht der Vakuumkammern auf dem Gestell 50
3.10 Aufbau des UHV-Systems (schematisch) 51
3.11 Reflektivität der Goldbeschichtung 52
3.12 Aufbau der Spiegelkammer 53
3.13 Aufbau der Experimentierkammer (schematisch) 54
3.14 Aufbau der Experimentierkammer (Foto) 55
3.15 Probenhalter in der Messposition (Aufsicht) 56
3.16 TOF-Transmission und Auflösung (Simulation) 57
3.17 Aufbau und Auflösung des In-Vakuum-Mikroskops 59

3.18 Eigenschaften des gepulsten Magnetfeldes 60
3.19 Konstruktionsansicht des Probentransfersystems 62

4.1 Intensitätsprofil des 800 nm-Lasers 63
4.2 M^2-Messung 64
4.3 Räumliche Stabilität des 800 nm-Lasers 65
4.4 Hysteresekurven von Py/Glas 66
4.5 Abhängigkeit des SH-Signals von Messdauer und Polarisatorstellung . 67
4.6 Strahlprofile des XUV-Lichts 69
4.7 Typische gemessene HH-Spektren 70
4.8 Druckabhängigkeit der HH-Spektren (Experiment) 71
4.9 Druckabhängigkeit der HH-Spektren (Theorie) 72
4.10 Intensitätsabhängigkeit der HH-Spektren (Experiment) 73
4.11 Intensitätsabhängigkeit der HH-Spektren (Theorie) 74
4.12 Abhängigkeit der Harmonischenintensität von der Pulskompression, Laserintensität in Abhängigkeit von der Blendenöffnung 75
4.13 Abhängigkeit der Harmonischenintensität von Targetdruck und Blendenöffnung 76
4.14 Ellipsoidfokus auf phosphorbeschichteter CCD-Kamera 77
4.15 Ellipsoidfokus vermessen mit Fadenkreuz 79
4.16 Scan über Cu-Netzchen 80
4.17 Xenon-Spektrum 82
4.18 GaAs-Spektrum 84
4.19 Si-Spektrum 85
4.20 Fe/GaAs und Fe/Si 87
4.21 MLDAD-Einzelspektren 89
4.22 MLDAD an der Fe 3p-Kante 90
4.23 Fehleranalyse MLDAD-Messung (Transmissionskorrektur) 93
4.24 Fehleranalyse MLDAD-Messung (Untergrundabzug) 94

A.1 Pump-Probe-Experiment mit Photoschalter (schematisch) 98
A.2 Alternatives Probenhalterdesign 99

Tabellenverzeichnis

3.1 Streufaktoren, kritischer Winkel, Absorptionslänge und Eindringtiefe der XUV-Strahlung berechnet für verschiedene Elemente 42

4.1 Energetische Positionen hoher und niedriger Zustandsdichte in der Si-Bandstruktur 86

5.1 Zusammenstellung wichtiger Laserparameter sowie Eigenschaften der XUV-Quelle und der HHG-Beamline 96

Kapitel 1

Einleitung

Die Herausforderungen bei der Erforschung von magnetischen Systemen liegen erstens in den zunehmend kleineren Strukturgrößen, da die Wechselwirkungen auf Längenskalen von 100 µm im Fall von Domänenstrukturen bis in den Nanometerbereich bei magnetischen Wirbelkernen stattfinden. Einen zweiten Schwerpunkt bildet die Untersuchung von spinabhängigen Transportphänomenen („Spintronics“), wobei hier die Komplexität und Vielfalt der in Frage kommenden Materialien reizvoll ist. Drittens ist die magnetische Dynamik auf ultrakurzen Zeitskalen von großem Interesse, die sich von der Präzession eines Elektronenspins im magnetischen Feld im Pikosekundenbereich[1] bis hinunter zu der spinabhängigen Abschirmung eines Rumpflochs durch die Valenzelektronen im Atom auf Attosekundenzeitskalen erstreckt [1]. Insbesondere die Suche nach immer schneller umzuschaltenden magnetischen Speichermedien verlangt nach einem tiefergehenden Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Ummagnetisierungsprozesse. Die Photoemissionsspektroskopie im XUV-Bereich[2] erweist sich aufgrund folgender Eigenschaften als besonders geeignete Messmethode zur Untersuchung der genannten Fragestellungen: Eine hohe Ortsauflösung kann zum einen durch eine Fokussierung der Strahlung in Verbindung mit einem Abrastern der betrachteten Proben und zum anderen durch eine elektronenoptische Abbildung der Oberfläche erreicht werden. Im Rahmen dieser Arbeit wird der erstgenannte Ansatz verfolgt, bei dem die maximale Auflösung durch die Strahlqualität der XUV-Quelle und die Güte der fokussierenden Optiken begrenzt ist. Wenn die Energie der anregenden Photonen ausreicht, die Elektronen der für jedes Element charakteristischen inneren Schalen freizusetzen, erhält man ein chemisch selektives Messsignal, so dass in komplexen Materialkombinationen die Beiträge der

[1] $1\,\mathrm{ps} = 10^{-12}\,\mathrm{s}$, $1\,\mathrm{fs} = 10^{-15}\,\mathrm{s}$ und $1\,\mathrm{as} = 10^{-18}\,\mathrm{s}$

[2] Der Spektralbereich der extrem ultravioletten Strahlung (im Folgenden mit XUV abgekürzt) reicht nach Ref. [2] von etwa 30 eV Photonenenergien bis ca. 250 eV (das entspricht Wellenlängen von 40 nm bis 5 nm). Daran schließt sich der Bereich der weichen Röntgenstrahlung an.

einzelnen Komponenten unterschieden werden können. Um dem dritten Aspekt gerecht zu werden, ist es das Ziel dieses Dissertationsprojekts, magnetische Systeme an einer Hohe-Harmonische-Quelle im Labor untersuchen zu können, da hieran eine bislang einzigartige Zeitauflösung im Attosekundenbereich demonstriert wurde.

Bereits im Jahr 1905 wurde von A. Einstein der photoelektrische Effekt erklärt [3], wonach die kinetische Energie des emittierten Elektrons von dessen Bindungsenergie im Atom und von der Energie des anregenden Photons abhängt. Um auch Elektronen tiefer liegender Schalen freisetzen zu können, ist aufgrund der hohen Bindungsenergien eine Anregung mit Licht im XUV- bzw. Röntgenbereich notwendig. Aus der Lage und Form der für ein chemisches Element charakteristischen Linien im Energiespektrum der emittierten Elektronen erhält man Informationen über deren elektronische und magnetische Umgebung. Die Sensitivität der Photoemissionsspektren gegenüber einer Änderung der magnetischen Ordnung und den unterschiedlich starken Korrelationen zwischen Elektronen- und Spinsystem manifestiert sich z.B. in dem Effekt des *linearen magnetischen Röntgendichroismus in der Winkelverteilung* der Photoelektronen. Diese spezielle Form des Dichroismus wird in der Literatur mit (X)MLDAD für englisch *(X-ray) Magnetic Linear Dichroism in the Angular Distribution* abgekürzt. Historisch betrachtet bezieht sich das Wort „Dichroismus“[3] entweder auf die Aufspaltung von sichtbarem Licht in verschiedenfarbige Anteile oder die polarisationsabhängige Absorption der Strahlung. Auf mikroskopischer Ebene ist der Ursprung des Dichroismus eine räumliche Anisotropie von Ladungen und Spins, wobei der MLDAD aus der Beeinflussung der Ladungsverteilung im Atom durch die Spin-Bahn-Kopplung und die Austauschwechselwirkung mit den ausgerichten Spins resultiert [4]. Die anregende Strahlung ist bei Verwendung einer Hohe-Harmonische-Quelle aufgrund des Erzeugungsmechanismus in natürlicher Weise linear polarisiert.

Im Laufe des Jahrhunderts nach der Entdeckung des Photoeffekts haben sich die XUV-Lichtquellen enorm weiterentwickelt. Zum einen stehen die auf der Beschleunigung geladener Teilchen basierenden Synchrotronstrahlungsquellen und Freie-Elektronen-Laser und zum anderen laserbasierte Laborlichtquellen (Plasma- und Hohe-Harmonische-Quellen) zur Verfügung. Die erstgenannten Strahlungsquellen zeichnen sich durch hohe Photonenflüsse und im Fall der Freie-Elektronen-Laser auch durch sehr gute Kohärenzeigenschaften und ultrakurze Pulse im Femtosekundenbereich aus. Die bisherigen Untersuchungen magnetischer Systeme mittels der Photoemissionsspektroskopie wurden im Wesentlichen an Synchrotronstrahlungsquellen durchgeführt, so dass die erreichbare Zeitauflösung durch deren Pikosekundenpulsdauern limitiert ist. Der Fokus dieser Arbeit liegt dagegen auf dem Aufbau und der Op-

[3] abgeleitet aus dem griechischen Wort *dichroos* für „zweifarbig“

timierung einer XUV-Laborquelle basierend auf dem Prinzip der Erzeugung hoher Harmonischer (HHG für engl. *high harmonic generation*) der anregenden Infrarotlaserpulse. Trotz der im Vergleich zum Freie-Elektronen-Laser um mehr als fünf Größenordnungen geringeren Intensitäten sowie des limitierten und nur begrenzt durchstimmbaren Energiebereichs der emittierten Photonen wurde von Drescher *et al.* gezeigt, dass an einer Hohe-Harmonische-Quelle und mit einem Flugzeitspektrometer als Elektronendetektor die (zeitaufgelöste) Photoemissionsspektroskopie an Oberflächen durchgeführt werden kann [5, 6]. Neben dem Vorteil der ständigen Verfügbarkeit einer Laborquelle im Vergleich zu den von Nutzergruppen weltweit stark frequentierten, beschleunigerbasierten XUV-Quellen, wodurch eine sorgfältige Abstimmung der zu kontrollierenden Parameter und lang angelegte Messreihen möglich sind, und neben den gegenüber Großforschungsanlagen deutlich reduzierten Aufbau- und Betriebskosten ist die erreichbare Zeitauflösung das entscheidende physikalische Argument für die Verwendung der Hohe-Harmonische-Quellen. Die abhängig von der Pulsdauer und Phasenstabilität der Infrarotlaserpulse ausgesendeten kohärenten fs- oder sogar as-Pulse sind perfekt zu den anregenden Laserpulsen synchronisiert, woraus sich die Möglichkeit für Pump-Probe-Experimente[4] mit bis zu as-Zeitauflösung ergibt, die vor allem in Gasphasen-Experimenten [7–11], aber bereits auch an einer Festkörperoberfläche [12] demonstriert wurde. Während ein deterministisches Umschalten der Magnetisierung durch eine Präzessionsbewegung der Spins nach Anlegen eines Magnetfeldpulses für Pulsdauern unter 2 ps nicht mehr möglich ist [13], erreicht man durch eine direkte Kontrolle der Spins mit Hilfe ultrakurzer Lichtpulse deutlich kürzere Antwortzeiten des magnetischen Systems. Nach der erstmaligen Beobachtung einer Magnetisierungsdynamik im Femtosekundenbereich von Beaurepaire *et al.* [14] wurden weitere Effekte auf dieser Zeitskala mit Hilfe von sichtbaren bzw. infraroten Laserpulsen [15, 16] oder Röntgenlicht [17, 18] nachgewiesen. Die Eignung der Photoemissionsspektroskopie für fs-zeitaufgelöste Messungen des Oberflächenmagnetismus wurde von Rhie *et al.* anhand der Valenzbandelektronen von Nickel demonstriert [19].

Aufgrund der geringen inelastischen freien Weglänge der Elektronen im Festkörper ist die Photoemissionsspektroskopie stark oberflächensensitiv, so dass die Experimente im Ultrahochvakuum (UHV) durchgeführt werden müssen und eine In-situ-Probenpräparation notwendig ist. Eine weitere Besonderheit bei geladenen Teilchen liegt in deren Beeinflussung durch externe Magnetfelder infolge der Lo-

[4] Im Deutschen auch Anrege-Abfrage-Experimente genannt, bei denen mit dem ersten Puls eine Dynamik des untersuchten Systems angeregt und mit dem nachfolgenden Puls abgefragt wird. Variiert man den zeitlichen Abstand der beiden Pulse, so kann man ähnlich einer Stroboskopaufnahme den Zustand des Systems zu den verschiedenen Zeitpunkten detektieren und die Zeitentwicklung verfolgen.

rentzkraft, so dass während der Aufnahme der Photoemissionsspektren kein starkes permanentes Magnetfeld anliegen darf. Das bedeutet im Allgemeinen die Messung der Restmagnetisierung (Remanenz) der Proben. Zur Aufnahme von Hysteresekurven und für Untersuchungen der Anisotropie der magnetischen Systeme ist daher eine Vorcharakterisierung mit einer rein optischen Methode wie dem nichtlinearen magneto-optischen Kerr-Effekt als ebenfalls oberflächenempfindliche Messmethode sinnvoll, die im Rahmen dieser Arbeit implementiert wurde.

Die Gliederung der vorliegenden Dissertation ist an dem Gesamtaufbau des Dichroismus-Experiments orientiert, der sich aus folgenden Komponenten zusammensetzt: Ein kommerziell erhältliches Femtosekundenlasersystem liefert die Ausgangsstrahlung zur Erzeugung hoher Harmonischer in einem Gasmedium (hier Neon) und nichtlinearer optischer Effekte an Oberflächen. Da die Generierung ultrakurzer Laserpulse bzw. der Aufbau und die Inbetriebnahme eines Kurzpulslasersystems vom Umfang her einer eigenständigen Dissertation entspricht, konzentriert sich diese Arbeit auf die für die Frequenzkonversion relevanten Eigenschaften der Laserstrahlung. Dazu wird in Kapitel 2.1 das theoretische Konzept der Gauß-Strahlen zur Beschreibung des Laserlichts eingeführt. Einer kurzen Vorstellung des Lasersystems in Kapitel 3.1 folgen die Messungen wesentlicher Strahlparameter in Kapitel 4.1. Die magnetisierungsabhängige Erzeugung der zweiten Harmonischen an Festkörperoberflächen wird als ergänzende Messmethode zur Vorcharakterisierung der magnetischen Proben vorgestellt. An die theoretische Beschreibung des zugrundeliegenden physikalischen Prinzips in Kapitel 2.2 schließt sich die Darstellung der experimentellen Realisierung an (Aufbau in Kapitel 3.2 sowie Proof-of-principle-Messungen in Kapitel 4.2). Die Laserpulse werden hauptsächlich für die Harmonischenerzeugung genutzt, um damit die für die Photoemissionsmessungen notwendige XUV-Strahlung bereitzustellen. Das physikalische Prinzip der HHG wird in Kapitel 2.3 eingeführt und im Rahmen des semiklassischen 3-Stufen-Modells behandelt. Der Aufbau der Harmonischenquelle ist in Kapitel 3.3 beschrieben, wobei hier die Besonderheiten des XUV-Spektralbereichs im Hinblick auf die Strahlführung, Detektion und Analyse herausgestellt werden. Daraus ergibt sich die Auswahl der Beamline-Komponenten. Um die Strahleigenschaften wie den Photonenfluss, die Divergenz und das Spektrum zu optimieren, wurden umfangreiche Charakterisierungsmessungen unter Variation verschiedener Parameter durchgeführt, die in Kapitel 4.3 zusammengestellt sind. Den Endpunkt der HHG-Beamline bildet der Messplatz für die Elektronenspektroskopie an Gasen und (magnetisierten) Festkörperoberflächen. In den Kapiteln 2.4 und 2.5 werden die theoretischen Grundlagen der Photoemissionsspektroskopie insbesondere an Oberflächen sowie des MLDAD für den Spezialfall der hier betrachteten Fe 3p-Elektronen behandelt. Während die wesentlichen Kom-

ponenten des UHV-Rezipienten zur Durchführung der Messungen in den Unterabschnitten von Kapitel 3.4 vorgestellt werden, wird abschließend in den Kapiteln 4.4 und 4.5 anhand ausgewählter Systeme die Funktionalität der Messapparatur gezeigt und der Nachweis des MLDAD beschrieben.

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

2.1 Gauß-Strahlen

Um die Propagation der sehr gut kollimierten Laserstrahlen unter Berücksichtigung der Wellennatur des Lichts zu beschreiben, werden Gauß-Strahlen z.B. in der Form der Hermite-Gauß-Moden als exakte, aber mathematisch noch gut handhabbare Lösungen der paraxialen Wellengleichung verwendet, deren Eigenschaften in diesem Kapitel vorgestellt werden. Ein Maß für die Strahlqualität realer Laserstrahlen ist hierbei die Abweichung von dem idealisierten Gauß-Strahl.

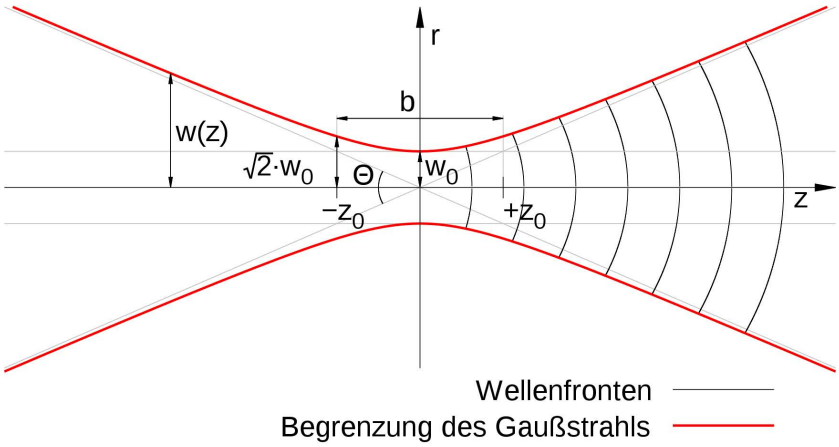


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines Gauß-Strahls, der sich entlang der z-Richtung ausbreitet (Strahlradius in der Strahltaille W_0, Rayleigh-Länge z_0, konfokaler Parameter $b = 2z_0$, Öffnungswinkel Θ). Entnommen aus Ref. [20].

Licht breitet sich in Form von Wellen aus, die die *Wellengleichung*

$$\nabla^2 \tilde{U}(\vec{r}, t) - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{U}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} = 0 \tag{2.1}$$

erfüllen müssen, wobei $c = c_0/n$ gilt mit der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum c_0 und dem Brechungsindex n des Mediums, durch das die Welle läuft. Die Welle wird in Form der komplexen Wellenfunktion

$$\tilde{U}(\vec{r}, t) = A(\vec{r}) \exp\left[i\varphi(\vec{r})\right] \exp(i\omega t) \equiv U(\vec{r}) \exp(i\omega t) \tag{2.2}$$

beschrieben, so dass die komplexe, nur ortsabhängige Größe $U(\vec{r})$, die sich aus der Amplitude $|U(\vec{r})| = A(\vec{r})$ und Phase $\varphi(\vec{r})$ zusammensetzt, der *Helmholtz-Gleichung*

$$\left(\nabla^2 + k^2\right) U(\vec{r}) = 0 \tag{2.3}$$

mit $k = \omega/c$ genügt. Betrachtet man paraxiale Wellen U_{par}, d.h. die Wellenfrontnormalen sind paraxiale Strahlen und die Amplitude der Welle ändert sich nur langsam entlang der Ausbreitungsrichtung z, gilt hierfür die *Paraxiale Helmholtz-Gleichung*

$$\nabla_\perp^2 U_{\text{par}} - i2k\frac{\partial U_{\text{par}}}{\partial z} = 0 \quad \text{mit} \quad \nabla_\perp^2 = \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2}\,. \tag{2.4}$$

Die Lösungen dieser Gleichung, die in sehr guter Näherung die sich zwischen den Endspiegeln eines Laseroszillators ausbreitenden Wellen beschreiben (sogenannte TEM_{lm}-Moden), bilden in x-, y- und z-Koordinaten die *Hermite-Gauß-Funktionen*, die eine vollständige Basis mit zueinander orthogonalen Funktionen darstellen und folgende Form besitzen:

$$\begin{aligned} U_{l,m}(x,y,z) = A_{l,m} &\left[\frac{W_0}{W(z)}\right] G_l\left[\frac{\sqrt{2}x}{W(z)}\right] G_m\left[\frac{\sqrt{2}y}{W(z)}\right] \\ &\times \exp\left[-ikz - ik\frac{x^2+y^2}{2R(z)} + i(l+m+1)\arctan\left(\frac{z}{z_0}\right)\right]\,. \end{aligned} \tag{2.5}$$

Hierbei gilt $G_l(u) = H_l(u)\exp(-u^2/2)$ mit den *Hermite-Polynomen*[1] H_l und $l = 0, 1, 2, \ldots$ Über die Beziehung

$$W(z) = W_0\left[1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2\right]^{1/2} \tag{2.6}$$

mit dem minimalen Strahlradius $W_0 = \sqrt{\lambda z_0/\pi}$ und der Rayleigh-Länge z_0 erhält man die Strahlbreite am Punkt z. Durch die Gleichung

$$R(z) = z + \frac{z_0^2}{z} \tag{2.7}$$

[1] Die *Hermite-Polynome* sind rekursiv durch die Relation $H_{l+1}(u) = 2uH_l(u) - 2lH_{l-1}(u)$ mit den Anfangsfunktionen $H_0(u) = 1$ und $H_1(u) = 2u$ bestimmt, wobei $l \in \mathbb{N}$ gilt. Die TEM_{00}-Mode eines Lasers ($l = m = 0$ in Gleichung 2.5) ist ein Gauß-Strahl mit radialsymmetrischer Intensitätsverteilung.

ergibt sich der Krümmungsradius der Wellenfront an diesem Punkt ($R \to \infty$ für $z = 0 \Rightarrow$ ebene Welle bei minimalem Strahlquerschnitt, $R \approx z$ für $z \gg 1 \Rightarrow$ Kugelwelle im Fernfeld, siehe auch Abb. 2.1).

Die üblicherweise im Experiment zugängliche physikalische Größe ist die Intensitätsverteilung in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Strahls, die sich aus $|U_{l,m}|^2$ nach Gleichung 2.5 ergibt. Außerdem kann bei realen Strahlen ein Astigmatismus nicht ausgeschlossen werden, so dass man in horizontaler und vertikaler Richtung unterschiedliche Strahlbreiten $W_x(z)$ und $W_y(z)$ einführen kann. Die im Rahmen dieser Arbeit gemessenen Intensitätsprofile $I(x, y)$ können durch die TEM_{00}-Mode gut beschrieben werden, so dass sie zur Bestimmung der Strahlbreite mit der Funktion

$$I(x, y) = I_0 \exp\left(-\frac{2x^2}{W_x^2}\right) \exp\left(-\frac{2y^2}{W_y^2}\right) \tag{2.8}$$

angefittet werden. Für einen idealen Gauß-Strahl mit $W_x = W_y \equiv W$ und $r^2 = x^2 + y^2$ vereinfacht sich die Gleichung zu

$$I(r) = \frac{2P_0}{\pi W^2} \exp\left(-\frac{2r^2}{W^2}\right) , \tag{2.9}$$

wobei $P_0 = \int\int |U|^2 \, dA$ die über eine senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung stehende Ebene mit Flächenelementen dA integrierte Gesamtleistung bezeichnet.[2] Daraus ergibt sich durch Integration die durch eine Apertur mit dem Radius R durchgelassene Leistung

$$P = P_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{2R^2}{W^2}\right)\right] \tag{2.10}$$

sowie unter Verwendung der *Regel von L'Hospital* die Spitzenintensität

$$I_{peak} = \lim_{R \to 0} \frac{P_0 \left[1 - \exp\left(-\frac{2R^2}{W^2}\right)\right]}{\pi R^2} = \frac{2P_0}{\pi W^2} . \tag{2.11}$$

Die obigen Ausführungen sind angelehnt an Ref. [21] und [22], in denen man eine über den Rahmen dieser Arbeit hinausgehende, detailliertere Behandlung der Eigenschaften Gaußscher Strahlen findet.

Für reale Laserstrahlen schlägt A. E. Siegman folgende Definition für die Strahlbreite in horizontaler Richtung x und analog dazu in vertikaler Richtung y vor (sogenanntes *zweites Moment* der Intensitätsverteilung, [23]):

$$\sigma_x^2 = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} (x - x_s)^2 \, I(x, y) \, dx \, dy}{\int_{-\infty}^{\infty} I(x, y) \, dx \, dy} , \tag{2.12}$$

[2] Oft wird die volle Halbwertsbreite (FWHM) der Intensitätsverteilung angegeben, die über die Gleichung $\mathrm{FWHM} = \sqrt{2 \ln 2} \cdot W = 1,1774 \cdot W$ mit der Strahlbreite W zusammenhängt.

wobei x_s die x-Koordinate des Schwerpunkts des Strahls bezeichnet, dessen Trajektorie die optische Achse festlegt. Es lässt sich zeigen, dass sich bei Verwendung dieser Definition und für $W_i \equiv 2\sigma_i$ mit $i \in \{x, y\}$ ein Laserstrahl beliebiger Intensitätsverteilung entlang der Strahlachse (= z-Richtung) gemäß der Gleichung

$$W_i^2(z) = W_{0i}^2 + M_i^4 \left(\frac{\lambda}{\pi W_{0i}} \right)^2 (z - z_{ci})^2 \tag{2.13}$$

mit der Position des minimalen Strahlquerschnitts z_{ci} ausbreitet. Der Parameter M^2, der für beliebige Strahlprofile größer als eins ist und nur für die reine TEM_{00}-Mode diesen Grenzwert annimmt, ist somit ein Maß für die Abweichung des realen Strahls von dem beugungsbegrenzten Fall eines idealen Gauß-Strahls.

2.2 SHG an Oberflächen

Da die Elektronenbahnen durch permanent anliegende Magnetfelder beeinflusst werden und die Photoemissionsmessungen deshalb im Allgemeinen in der Remanenz der Proben durchgeführt werden müssen, ist eine rein optische Methode zur Bestimmung der Hysteresekurven sowie der magnetischen Vorzugsrichtungen sinnvoll. Aus diesem Grund wurde zusätzlich zu der Messapparatur für die Photoemissionsspektroskopie ein experimenteller Aufbau zur Detektion der durch intensive Laserpulse an Oberflächen erzeugten, frequenzverdoppelten Anteile realisiert. Die Erzeugung der zweiten Harmonischen eines Laserpulses (im Folgenden mit SHG für englisch *second harmonic generation* abgekürzt) wurde anhand theoretischer Überlegungen von Pan *et al.* [24] für die Messung des Oberflächenmagnetismus vorgeschlagen und deren Magnetisierungsabhängigkeit experimentell zum ersten Mal von Reif *et al.* [25] an Eisenfilmen beobachtet. Seitdem wird diese häufig auch als *nichtlinearer magneto-optischer Kerr-Effekt* bezeichnete Messmethode zur Untersuchung der Magnetisierung von Oberflächen und mit Licht erreichbaren Grenzschichten angewendet (für eine Übersicht siehe z.B. Ref. [26]). Die theoretischen Grundlagen werden im Folgenden für die vorliegende Messgeometrie und die verwendeten magnetischen Proben (amorphe Permalloyfilme auf einem Glassubstrat) dargestellt und sind angelehnt an die Ausführungen zur Theorie der nichtlinearen Optik in Metallen in Ref. [27] und [28].

Die Materieantwort auf ein äußeres elektrisches Feld (z.B. in Form eines Laserpulses) wird durch die Polarisation $\vec{P}$ als mittleres induziertes Dipolmoment pro Volumen beschrieben, die sich als Funktion der Feldstärke $\vec{E}$ in Form folgender Reihenentwicklung darstellen lässt:

$$\vec{P} = \chi_1 \vec{E} + \chi_2 \vec{E}\vec{E} + \dots \tag{2.14}$$

Die Proportionalitätsfaktoren werden als lineare und nichtlineare Suszeptibilitäten bezeichnet. Die Suszeptibilität zweiter Ordnung[3], die die Erzeugung von Strahlung mit der doppelten Frequenz im Vergleich zum einfallenden Licht beschreibt, ist bereits ein Tensor dritter Stufe mit 27 Elementen. In Materialien mit einer Inversionssymmetrie, was auch für die in dieser Arbeit untersuchten Permalloyfilme gilt, verschwinden aus Symmetriegründen die Suszeptibilitäten gerader Ordnung, d.h. die Erzeugung der zweiten Harmonischen kann lediglich an Ober- und Grenzflächen des

[3]Beiträge höherer Ordnung sollen hier nicht berücksichtigt werden, da sie für magnetische Systeme im Allgemeinen klein sind gegenüber dem Beitrag zweiter Ordnung; die Summe dieser Terme kann jedoch, da auch Anteile aus dem Volumen hinzukommen, von der gleichen Größenordnung wie der lediglich aus der Oberfläche stammende dipolare Anteil sein.

Materials erfolgen, an denen die Symmetrie gebrochen ist. In magnetischen Proben hängen die Suszeptibilitäten außerdem von der Magnetisierung $\vec{M}$ ab, die als axialer Vektor im Gegensatz zu der elektrischen Feldstärke invariant unter der Paritätstransformation[4] ist, wodurch die Symmetrieeigenschaften verändert werden. Die Suszeptibilität zweiter Ordnung kann in gerade und ungerade Anteile in Bezug auf eine Magnetisierungsumkehr aufgespalten werden, so dass sich die Polarisation aus Gleichung 2.14 wie folgt schreiben lässt:

$$P_i = \chi_{ij}E_j + \chi_{ijl}E_jE_l + \chi_{ijlm}E_jE_lM_m + \chi_{ijlmn}E_jE_lM_mM_n + \dots \tag{2.15}$$

Dabei ergeben sich die nichtverschwindenden Tensorelemente aus Symmetrieüberlegungen und hängen von den zu untersuchenden Materialien und experimentellen Geometrien ab.

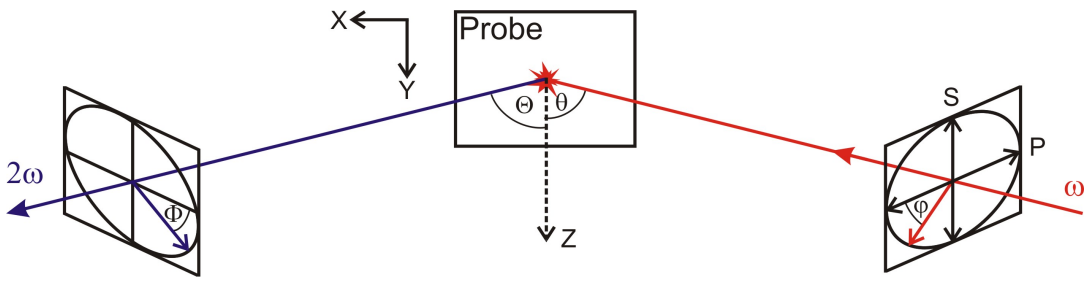


Abbildung 2.2: Geometrie der Reflexionsmessungen und Kennzeichnung der entsprechenden Winkel und Koordinatenrichtungen.

In Abbildung 2.2 ist schematisch die Messanordnung gezeigt. Die Laserpulse mit der Frequenz ω und der durch den Winkel φ gekennzeichneten Ausgangspolarisation (die p- und s-Polarisationsrichtung sind als Spezialfall mit eingetragen) treffen von rechts kommend unter dem Winkel θ gemessen zur Oberflächennormalen auf die Probe. Man detektiert nun auf der linken Seite das unter dem Winkel Θ abgestrahlte SH-Licht mit der doppelten Frequenz und der gedrehten Polarisationsrichtung Φ. Bei den in dieser Arbeit vorgestellten Messungen wurde der transversale magnetooptische Kerr-Effekt untersucht, d.h. das Magnetfeld lag in y-Richtung an der Probe an. Zudem war die Eingangsstrahlung p-polarisiert ($\varphi = 0$) und der Detektor in der Reflexionsrichtung der Fundamentalen aufgestellt ($\Theta = \theta = 45°$). Die an der Oberfläche erzeugte SH-Intensität $I(2\omega) = |E(2\omega)|^2$ kann mit folgender Gleichung für die elektrische Feldstärke bestimmt werden:

[4]Die Paritätstransformation $\mathcal{P}$ bewirkt eine Punktspiegelung am Koordinatenursprung: $\mathcal{P}\,\vec{r} = -\vec{r}$. Das Magnetfeld und damit auch die Magnetisierung besitzen im Gegensatz zum elektrischen Feld eine gerade Parität, so dass gilt: $\mathcal{P}\,f(\vec{E},\vec{M}) = f(-\vec{E},\vec{M})$ [4].

$$E_j(2\omega;\Phi,\varphi) = 2i\,\frac{\omega}{c}\,|E_l(\omega)E_m(\omega)|^2\,\delta z$$
$$\times \begin{pmatrix} A_p\,F_c\cos\Phi \\ A_s\sin\Phi \\ A_p\,N^2F_s\cos\Phi \end{pmatrix}^{\mathrm{T}} \chi_{jlm} \begin{pmatrix} f_c^2\,t_p^2\,\cos^2\varphi \\ t_s^2\,\sin^2\varphi \\ f_s^2\,t_p^2\,\cos^2\varphi \\ 2\,f_s\,t_p\,t_s\,\cos\varphi\,\sin\varphi \\ 2\,f_c\,f_s\,t_p^2\,\cos^2\varphi \\ 2\,f_c\,t_p\,t_s\,\cos\varphi\,\sin\varphi \end{pmatrix} \tag{2.16}$$

mit den Projektionen des Wellenvektors $\vec{k}$ der einfallenden Strahlung auf die räumlichen Koordinaten im Material $f_s = \sin\theta/n$ und $f_c = \sqrt{1-f_s^2}$, den linearen Transmissionskoeffizienten $t_p = 2\cos\theta/(n\cos\theta + f_c)$ und $t_s = 2\cos\theta/(\cos\theta + nf_c)$ sowie den Koeffizienten der SH-Abstrahlung $A_p = 2\pi T_p/\cos\Theta$ und $A_s = 2\pi T_s/\cos\Theta$. Die Großbuchstaben beziehen sich jeweils auf die SH-Wellenlänge wie z.B. der Brechungsindex $N \equiv n(2\omega)$; die Definitionen für F_s, F_c, T_p und T_c sind analog zu denen für die eingestrahlte Fundamentalwellenlänge (kleine Buchstaben). Die Länge δz beschreibt den Bereich, über den sich χ_{jlm} erstreckt, und sorgt für die Dimension m/V der Suszeptibilität. Bei der Suszeptibilität zweiter Ordnung reduzieren sich die 27 Elemente aufgrund der Ununterscheidbarkeit der zwei zur Frequenzverdopplung beitragenden Photonen auf 18 Elemente, so dass sich χ_{jlm} in folgende Matrixdarstellung fassen lässt:

$$\chi_{jlm} = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & | & \chi_{xyz} & \chi_{xzx} & \chi_{xxy} \\ \chi_{yxx} & \chi_{yyy} & \chi_{yzz} & | & \chi_{yyz} & \chi_{yzx} & \chi_{yxy} \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & | & \chi_{zyz} & \chi_{zzx} & \chi_{zxy} \end{pmatrix}. \tag{2.17}$$

Da der Volumenbeitrag für inversionssymmetrische Festkörper verschwindet und die SH-Intensität lediglich von der Symmetrie der Ober- bzw. Grenzfläche abhängt, reduzieren sich die von Null verschiedenen Tensorelemente weiter. Für eine isotrope Oberfläche in der xy-Ebene bleiben nur die drei unabhängigen (und im Allgemeinen komplexen) Matrixelemente $\chi_{zxx} = \chi_{zyy}$, χ_{zzz} und $\chi_{yyz} = \chi_{xzx}$ übrig. Die Einführung einer Magnetisierung $\vec{M} = (0, M_y, 0)$ durch Anlegen eines äußeren magnetischen Feldes in y-Richtung verändert die Symmetrieeigenschaften des Materials so, dass sich wiederum nach Betrachtung geeigneter Symmetrieoperationen für die geraden (g) und ungeraden (ug) Elemente der Suszeptibilität folgende nichtverschwindende Koeffizienten der Matrix aus Gleichung 2.17 ergeben:

$$\chi_{\mathrm{g}}(\vec{M}) = \chi_{\mathrm{g}}(-\vec{M}) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & | & 0 & \chi_{xzx} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & | & \chi_{yyz} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zyy} & \chi_{zzz} & | & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{2.18}$$

sowie

$$\chi_{\mathrm{ug}}(\vec{M}) = -\chi_{\mathrm{ug}}(-\vec{M}) = \begin{pmatrix} \chi_{xxx} & \chi_{xyy} & \chi_{xzz} & | & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & | & 0 & 0 & \chi_{yxy} \\ 0 & 0 & 0 & | & 0 & \chi_{zzx} & 0 \end{pmatrix} \tag{2.19}$$

mit $\chi_{zxx}(M_y) \neq \chi_{zyy}(M_y)$ und $\chi_{yyz}(M_y) \neq \chi_{xzx}(M_y)$. Für den speziellen und in dieser Arbeit untersuchten Fall von p-polarisiertem einfallenden und auslaufenden Licht sind die geraden Tensorelemente χ_{xzx}, χ_{zxx} und χ_{zzz} sowie die ungeraden Elemente χ_{xxx}, χ_{xzz} und χ_{zzx} ungleich Null, und für das elektrische Feld erhält man aus Gleichung 2.16:

$$\begin{aligned} E(2\omega;0,0) &= 2i\,\frac{\omega}{c}\,|E(\omega)|^2\,\delta z\,A_p\,\big[(2F_c\,f_c\,f_s\,t_p^2\,\chi_{xzx} + N^2\,F_s\,f_c^2\,t_p^2\,\chi_{zxx} \\ &\quad + N^2 F_s\,f_s^2\,t_p^2\,\chi_{zzz}) + (F_c\,f_c^2\,t_p^2\,\chi_{xxx} + F_c\,f_s^2\,t_p^2\,\chi_{xzz} \\ &\quad + 2N^2 F_s\,f_c\,f_s\,t_p^2\,\chi_{zzx})\big] \\ &\equiv C(\Theta)I(\omega)\left(\chi_{\mathrm{g}}^{\mathrm{eff}}(\theta,\Theta) + \chi_{\mathrm{ug}}^{\mathrm{eff}}(\theta,\Theta)\right) \end{aligned} \tag{2.20}$$

mit der Spitzenintensität der einfallenden Laserstrahlung $I(\omega)$. Zusätzlich gilt für eine Messung in der Reflexionsrichtung, dass der Austrittswinkel der SH-Strahlung Θ gleich dem Einfallswinkel der Fundamentalen θ ist. Die Intensität des SH-Signals erhält man durch Quadrieren der obigen Gleichung, und eine Reihenentwicklung unter Berücksichtigung nur der Terme erster Ordnung in der Magnetisierung liefert die Beziehung

$$I(2\omega) \propto \left|\chi_{\mathrm{ug}}^{\mathrm{eff}}\right|^2 m^2 + 2\cos(\alpha)\left|\chi_{\mathrm{g}}^{\mathrm{eff}}\right|\left|\chi_{\mathrm{ug}}^{\mathrm{eff}}\right| m + \left|\chi_{\mathrm{g}}^{\mathrm{eff}}\right|^2 \tag{2.21}$$

mit $m \equiv M/M_s$, der Sättigungsmagnetisierung M_s und der Phasendifferenz α zwischen $\chi_{\mathrm{g}}^{\mathrm{eff}}$ und $\chi_{\mathrm{ug}}^{\mathrm{eff}}$. Es ergibt sich also eine quadratische Abhängigkeit von der Probenmagnetisierung und die Möglichkeit zur Kalibrierung der Messung [29, 30]. Teplin *et al.* haben die Amplituden und relativen Phasen der für isotrope Permalloyfilme relevanten Tensorelemente durch Messung vieler Polarisations- und Magnetisierungsrichtungen bestimmt [31]. Eine charakteristische Größe für die magnetischen Materialien ist die Asymmetrie der SH-Intensitäten bei Umkehrung der Sättigungsmagnetisierung, die durch folgenden Ausdruck gegeben ist:

$$A_{\mathrm{SHG}} = \frac{I(+M_s) - I(-M_s)}{I(+M_s) + I(-M_s)}\,. \tag{2.22}$$

2.3 Erzeugung hoher Harmonischer

Fokussiert man einen intensiven Laserpuls in ein gasförmiges Medium, kommt es aufgrund der hohen Feldstärken zu einer Verbiegung der Potentialbarriere des Coulomb-Potentials im Atom, so dass ein Elektron durch Tunnelionisation freigesetzt werden kann. Durch die nachfolgende beschleunigte Hin- und Herbewegung des quasifreien Elektrons im elektrischen Feld des Laserpulses und eine anschließende Rekombination mit dem Ion sendet das Atom im zeitlichen Abstand der halben Periodendauer des oszillierenden Laserfeldes Lichtblitze aus, die sich durch kohärente Überlagerung zu einem stark modulierten Spektrum mit Intensitätspeaks bei ungeraden Vielfachen der Laserfrequenz aufaddieren. Die Maximalenergie der emittierten Photonen hängt zum einen von dem Ionisationspotential der verwendeten Gasatome sowie von der im elektrischen Feld aufgenommenen Energie ab. Für die Ausbildung eines makroskopisch messbaren Harmonischenfeldes spielen verschiedene dispersive Effekte bei der Propagation der Strahlung im Gasmedium eine Rolle, die in Form einer Phasenanpassungsbedingung berücksichtigt werden müssen. Im Folgenden werden zunächst die generellen Eigenschaften der Harmonischenstrahlung beschrieben und im Rahmen eines halbklassischen 3-Stufen-Modells erklärt. Abschließend werden die wesentlichen Effekte vorgestellt, die die räumliche und zeitliche Phase des Harmonischenfeldes beeinflussen.

2.3.1 Spektrale Eigenschaften der Strahlung

Die Erzeugung von XUV-Strahlung durch die Generierung hoher Harmonischer von Infrarotstrahlung in einem Edelgasmedium wurde zuerst von J. Wildenauer [32] und M. Ferray *et al.* [33] beschrieben. Bei der Wechselwirkung eines intensiven elektrischen Laserfeldes der Frequenz ω_0 mit Edelgasatomen wird aufgrund von nichtlinearen Prozessen u.a. elektromagnetische Strahlung mit folgenden Eigenschaften emittiert (siehe auch Abb. 2.3):

1. Das Spektrum besteht aus Linien im Abstand von $2\omega_0$, die bei einem ungeraden Vielfachen der Fundamentalfrequenz auftreten: $\omega_q = q\omega_0$, wobei $q = 2l + 1$ ($l \geq 1, l \in \mathbb{N}$) die Harmonischenordnung bezeichnet.

2. Nach einem exponentiellen Abfall der Harmonischenintensität auf der niederenergetischen Seite des Spektrums, der störungstheoretisch erklärt werden kann, folgt ein Bereich, in dem die Intensität aufeinanderfolgender Harmonischer konstant bleibt (*Plateau*).

3. Die Ausbildung hoher Harmonischer im kurzwelligen Bereich des Spektrums erfolgt nur bis zu der Maximalenergie $E_{\text{cut-off}}$, die durch folgende Gleichung

bestimmt ist [34]:

$$\begin{aligned} E_{\text{cut-off}} &= \hbar\omega_{\text{cut-off}} = I_p + 3,17\,U_p \\ \text{mit} \quad U_p &= \frac{e^2 E_L^2}{4 m_e \omega_0^2} \\ \text{bzw.} \quad U_p[\text{eV}] &= 9,3375 \cdot 10^{-20} \cdot \lambda_0[\text{nm}]^2 \cdot I[\text{W/cm}^2] \end{aligned} \tag{2.23}$$

mit dem Ionisationspotential der verwendeten Gasatome I_p, der Elementarladung e, dem elektrischen Feld des Lasers $E_L = \sqrt{2I/(\epsilon_0 c_0)}$, der Elektronenmasse m_e, der Zentralwellenlänge des Laserpulses λ_0, der elektrischen Feldkonstante ϵ_0 sowie der Laserintensität I. U_p ist die mittlere kinetische Energie, die das Elektron durch die Hin- und Herbewegung im elektrischen Feld erhält, und wird als *Ponderomotives Potential* bezeichnet.

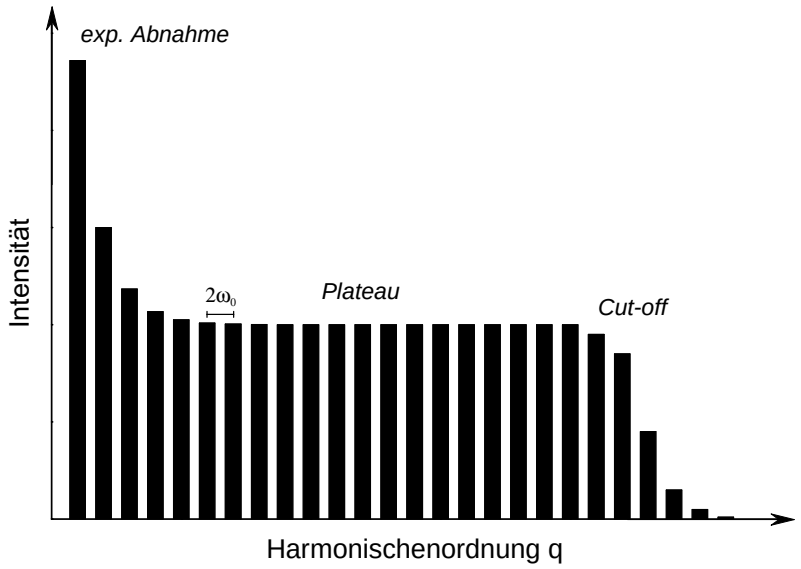


Abbildung 2.3: HH-Spektrum (schematisch) mit exponentieller Abnahme der Intensität für die niedrigen Harmonischen, Plateau und Cut-off mit anschließendem schnellen Intensitätsabfall.

2.3.2 3-Stufen-Modell

Nachdem Gleichung 2.23 zur Bestimmung der maximalen Harmonischenenergie zuvor durch numerische Integration der zeitabhängigen Schrödingergleichung bzw. der Hartree-Fock-Gleichungen empirisch gefunden wurde [36], lässt sie sich zusammen mit den generellen Eigenschaften des Harmonischenspektrums im Rahmen eines halbklassischen, dreistufigen Modells für die Einzelatomantwort auf ein intensives Laserfeld verstehen (*Corkum-* oder *3-Stufen-Modell*, [34]): Im ersten Schritt des Prozesses der Harmonischenerzeugung (Abb. 2.4a) wird das Atom ionisiert. Dabei dominiert in dem hier betrachteten Intensitätsbereich die Tunnelionisation infolge einer

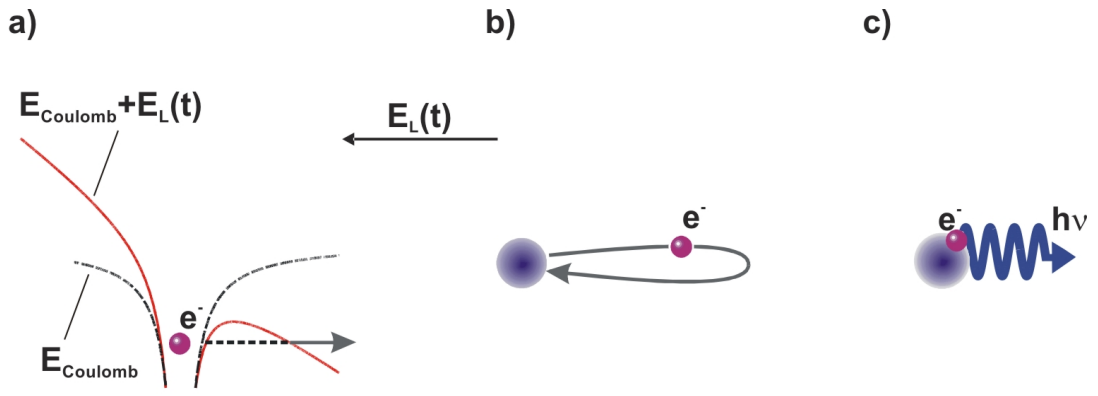


Abbildung 2.4: 3-Stufen-Modell der Harmonischenerzeugung (entnommen aus [35]). a) Tunnelionisation. b) klassische beschleunigte Bewegung des Elektrons im elektrischen Feld des Lasers. c) Rekombination mit dem Ion unter Aussendung eines XUV-Photons.

laserinduzierten Verbiegung der durch das Coulomb-Potential des Atoms vorgegebenen Energiebarriere[5] gegenüber der Multiphotonenionisation. Zur Identifikation des vorherrschenden Ionisationsprozesses dient der *Keldysh-Parameter* [37]

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = 2,31 \cdot 10^9 \cdot \sqrt{\frac{I_p[\mathrm{eV}]}{I[\mathrm{W/cm^2}] \cdot \lambda_0[\mathrm{nm}]^2}} \,. \tag{2.24}$$

Ist die Energie, die das Elektron im Laserfeld aufnimmt, größer als das Ionisationspotential, so gilt $\gamma < 1$, und die Tunnelzeit ist kleiner als die halbe Periodendauer des anregenden elektrischen Feldes, so dass das Elektron das Atom verlassen kann.[6] Die Bestimmung der Ionisationsrate R erfolgt nach der von *Ammosov*, *Delone* und *Kraïnov* hergeleiteten und für alle Atom- und Ionensorten gültigen Formel [34, 39]:

$$R = \omega_p \left|C_{n^*l^*}\right|^2 G_{lm} \left(\frac{4\omega_p}{\omega_t}\right)^{2n^*-m-1} \exp\left(-\frac{4\omega_p}{3\omega_t}\right) , \tag{2.25}$$

wobei $\omega_p = I_p/\hbar$, $\omega_t = eE_L(2m_eI_p)^{-1/2}$, $n^* = (I_h/I_p)^{1/2}$ mit dem Ionisationspotential von Wasserstoff I_h, $G_{lm} = (2l+1)(l+|m|)!(2^{-|m|})/|m|!(l-|m|)!$ mit der Drehimpulsquantenzahl l und der magnetischen Quantenzahl m und $\left|C_{n^*l^*}\right|^2 = 2^{2n^*}[n^*\Gamma(n^*+l^*+1)\Gamma(n^*-l^*)]^{-1}$ mit $l^* = 0$ für $l \ll n$ und ansonsten $l^* = n^* - 1$ sowie mit der Gammafunktion $\Gamma(x)$ gelten. Mittelt man die Ionisationsrate über

[5] Das resultierende Potential ergibt sich aus der Summe des elektrischen Potentials des Lasers eE_Lx und des Atompotentials unter Annahme eines nur langsam variierenden Laserfeldes $E_L(t) = E_0\cos(\omega_0 t)$ polarisiert in der x-Richtung.

[6] Bei den hier vorliegenden Laserintensitäten um $1,5 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$ ergibt sich für Neon als Targetgas ($I_p = 21,6\,\mathrm{eV}$ [38]) ein Keldysh-Parameter von $\gamma = 0,347$ und ein Ponderomotives Potential von $U_p = 89,64\,\mathrm{eV}$.

eine Periode des Laserfeldes, erhält man [40]

$$R_{\text{ave}} = \left(\frac{3\omega_t}{2\pi\omega_p}\right)^{1/2} R\,. \tag{2.26}$$

Die nachfolgende Bewegung des Elektrons im elektrischen Feld des Lasers (zweiter Schritt der HHG, Abb. 2.4b) beschreibt man bei Vernachlässigung des atomaren Potentials im Rahmen der klassischen Mechanik:

$$\begin{aligned} a(t) &= \frac{eE_0}{m_e}\cos(\omega_0 t + \varphi) \\ v(t) &= \frac{eE_0}{m_e\omega_0}\left[\sin(\omega_0 t + \varphi) - \sin\varphi\right] \\ x(t) &= \frac{eE_0}{m_e\omega_0^2}[\cos\varphi - \cos(\omega_0 t + \varphi)] - \sin\varphi\frac{eE_0}{m_e\omega_0}\,t \end{aligned} \tag{2.27}$$

mit den Anfangsbedingungen $x(0) = 0$ und $v(0) = 0$. Damit das Elektron zu dem Ion zurückkehren kann, ist die Anregung mit linear polarisiertem Licht notwendig. Bei zirkular polarisierter Strahlung sorgt dagegen der um die optische Achse rotierende elektrische Feldvektor für eine spiralförmige Bewegung des Elektrons um das Ion herum, so dass die Harmonischenemission stark unterdrückt ist. Die Randbedingung $x(\tau) = 0$ für den Rückkehrzeitpunkt $\tau = \tau(\varphi)$ sowie das Kriterium $\frac{dv(\tau)}{d\varphi} = 0$ für die maximale Geschwindigkeit und somit maximale Energie zu diesem Zeitpunkt liefern den oben angegebenen Wert von $E_{\max} = 3,17\,U_p$. Während für die Harmonischenerzeugung im Cut-off-Bereich im Wesentlichen ein Rückkehrzeitpunkt τ_c ausschlaggebend ist, tragen im Plateau-Bereich zwei Zeitpunkte τ_s und τ_l dazu bei, die einer kurzen (Index s) und einer langen (l) Trajektorie entsprechen.

Im dritten Schritt (Abb. 2.4c) kann das Elektron neben konkurrierenden Prozessen wie Elektronenstoßionisation (tritt mit signifikanter Wahrscheinlichkeit vor allem für höhere Laserintensitäten als die hier betrachteten auf) oder inelastischer und elastischer Streuung auch mit dem Ion unter Aussendung von Strahlung rekombinieren. Das Emissionsspektrum wird hierbei aus der Fouriertransformation des Erwartungswertes des zeitabhängigen atomaren Dipoloperators $D(t) = \langle\Psi(t)|ex|\Psi(t)\rangle$ mit der aus Grundzustands- und Kontinuumsanteil zusammengesetzten Wellenfunktion $\Psi(t)$ bestimmt.

Zusätzlich zu dem halbklassischen 3-Stufen-Modell zur Beschreibung der Harmonischenerzeugung, welches die wesentlichen Merkmale des emittierten Spektrums erklären kann, wurden erfolgreich weitere theoretische Ansätze verfolgt: Neben numerischen Methoden zur Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung [41, 42] und rein klassischen Modellrechnungen [43] wurde eine quantenmechanische Beschreibung des 3-Stufen-Modells zuerst von L'Huillier *et al.* [44] und Lewenstein *et*

al. [45] entwickelt. Becker *et al.* haben die zeitabhängige Schrödingergleichung für ein einfaches Modellpotential (*zero range pseudo potential model*) analytisch gelöst [46].

Da die Wahrscheinlichkeit für die Tunnelionisation exponentiell von der Breite der Potentialbarriere abhängt, verlässt das Elektron im Wesentlichen zum Zeitpunkt der größten Feldstärke das Atom, so dass die Emission von XUV-Strahlung periodisch und phasengekoppelt an das elektrische Feld des Lasers erfolgt. Die Periodendauer ist aufgrund der Symmetrie des Coulomb-Potentials des Atoms gleich der halben Periodendauer $T_0/2$ des Laserfeldes; allerdings ändert sich dessen Vorzeichen und damit auch das des emittierten Feldes E_q der q-ten Harmonischen. Es lässt sich deshalb folgendermaßen für einen viele optische Perioden N umfassenden Puls[7] schreiben [40, 47]:

$$\begin{aligned} E_q &= \sum_{n=0}^{2N-1} (-1)^n A_q \exp[-i(\omega_q t + n\omega_q T_0/2 + \varphi_q)] \\ &= A_q \exp[-i(\omega_q t + \varphi_q)] \frac{1 - \exp[-i2N(\omega_q T_0/2 - \pi)]}{1 - \exp[-i(\omega_q T_0/2 - \pi)]} \,. \end{aligned} \tag{2.28}$$

Dieser Ausdruck nimmt große Werte an für $1 - \exp[-i(\omega_q T_0/2 - \pi)] \to 0$, was $\omega_q = (2l+1)\omega_0$ mit $l \in \mathbb{N}$ und damit die bevorzugte Emission ungerader Harmonischer impliziert.

2.3.3 Propagationseffekte und Phasenanpassung

Weil im Experiment Abweichungen von dem oben beschriebenen Cut-off-Gesetz festgestellt wurden [44], muss die Theorie, die die Harmonischenerzeugung als Summe der Einzelatomantworten betrachtet, hinsichtlich der Effekte durch die Fokussierung des Lasers und die Propagation im Medium erweitert werden. Zur Bestimmung des sich im makroskopischen Medium ausbildenden Harmonischenfeldes löst man die folgenden Propagationsgleichungen [48]:

$$\begin{aligned} \Delta_\perp E_0(\vec{r},t) + 2ik_0(\vec{r},t)\frac{\partial E_0(\vec{r},t)}{\partial z} &= 0 \\ \Delta_\perp E_q(\vec{r},t) + 2ik_q(\vec{r},t)\frac{\partial E_q(\vec{r},t)}{\partial z} &= -\frac{q^2\omega_0^2}{\epsilon_0 c^2} P_q^{\mathrm{NL}}(\vec{r},t) \exp[i(qk_0 - k_q)z] \end{aligned} \tag{2.29}$$

mit der Amplitude E_0 und dem Wellenvektor $\vec{k}_0$ des Laserfeldes ($k_0 = |\vec{k}_0|$). Der Index q steht für die dementsprechenden Größen des Harmonischenfeldes mit $k_q = qk_0 = 2\pi q/\lambda_0$. Dabei nimmt man neben der paraxialen Näherung an, dass sich die

[7] Selbst bei einem nur 40 fs andauernden Puls (FWHM der Einhüllenden) bildet sich ein Linienspektrum aus, da das elektrische Feld bei einer Wellenlänge von 800 nm und damit einer Periodendauer von $T_0 = 2,67$ fs etwa 15 Perioden durchläuft.

Feldamplitude nur langsam ändert und die Energie des Laserfeldes aufgrund der nur geringen Konversionseffizienz konstant bleibt. Als Quellterm für die Harmonischenerzeugung dient die entsprechende Fourierkomponente der nichtlinearen Polarisation $P_q^{\mathrm{NL}} = N_a(z,t)\, D_q(\vec{r},t)$, die sich als Produkt aus der Atomdichte N_a und der q-ten harmonischen Komponente des mit Hilfe der oben genannten Theorie für die Einzelatomspektren bestimmten, atomaren Dipolmoments D_q schreiben lässt. Die Ausbildung der Harmonischenstrahlung wird erstens durch die Reabsorption im Medium und zweitens durch die Phasenbeziehung zwischen Laser- und Harmonischenfeld bestimmt. Man führt hier die sogenannte Absorptionslänge $L_{\mathrm{abs}} = 1/(N_a\sigma_q)$ mit dem Ionisationswirkungsquerschnitt σ_q ein, nach der das Harmonischenfeld um den Faktor $\exp(0,5)$ abgeschwächt ist, sowie die Kohärenzlänge $L_{\mathrm{coh}} = \pi/|\Delta\vec{k}_{\mathrm{ges}}|$, nach der Laser- und Harmonischenfeld um π phasenverschoben sind und danach destruktiv interferieren. Während die Absorption in den Imaginärteil des Brechungsindex bzw. in den Wellenvektor k_q mit $\mathrm{Im}(k_q) = N_a\sigma_q/2$ eingeht, findet man für die Phasenbeziehung die Formel (sogenannte *Phasenanpassungsbedingung*):

$$\vec{k}_q = q\vec{k}_0 + \Delta\vec{k}_{\mathrm{dipol}} + \underbrace{\Delta\vec{k}_{\mathrm{geo}} + \Delta\vec{k}_{\mathrm{atom}} + \Delta\vec{k}_{\mathrm{elek}}}_{\Delta\vec{k}_{\mathrm{ges}}} \,. \tag{2.30}$$

Die einzelnen Terme werden im Folgenden näher erläutert:

1. Dipolphase $\Delta\vec{k}_{\mathrm{dipol}}$
   Der Ursprung dieses Phasenterms liegt in der Bewegung des Elektrons im Laserfeld auf der zur Harmonischenemission führenden Trajektorie, die es in der Zeit τ durchläuft. Im Plateau-Bereich besteht in guter Näherung ein linearer Zusammenhang zwischen der Dipolphase Φ_q und der Laserintensität I, so dass sich erstere durch $\Phi_q \approx -U_p\tau \approx -\alpha I$ beschreiben lässt. Die Steigung α hängt von dem Rückkehrzeitpunkt und schwach von der Harmonischenordnung ab. Die erstgenannte Abhängigkeit bewirkt eine unterschiedliche Phasenanpassungsbedingung für die bei Durchlaufen der langen und der kurzen Trajektorie erzeugte Harmonischenstrahlung (unterschiedlicher Wert α_j für $j = s$ bzw. $j = l$; es ist $\alpha_l > \alpha_s$). Für den Beitrag zum Gesamtwellenvektor ergibt sich: $\Delta\vec{k}_{\mathrm{dipol}} = \nabla\Phi_q = -\alpha\nabla I$.

2. Geometrische Dispersion $\Delta\vec{k}_{\mathrm{geo}}$
   Die Fokussierung des Lasers im Medium erzeugt eine Phasenänderung, die *Gouy-Phase* genannt wird und sich auf der optischen Achse durch die Gleichung $\Phi_{\mathrm{geo}}(z) = -\arctan(z/z_0)$ bzw. an einem Punkt mit Abstand r von der z-Achse durch

$$\Phi_{\mathrm{geo}}(r,z) = \arg\left[1/(2z_0 + 2iz)\exp(-k_0 r^2/(2z_0 + 2iz))\right]$$

mit der Rayleigh-Länge z_0 beschreiben lässt. Die Phasendifferenz erhält man aus der Beziehung $\Delta\vec{k}_{\text{geo}} = \nabla\Phi_{\text{geo}}$, woraus sich für $r = 0$ in erster Näherung (d.h. insbesondere für im Vergleich zur Mediumlänge große Rayleigh-Längen) die Formel $\Delta\vec{k}_{\text{geo}} \approx -q/z_0\,\hat{z}$ mit dem Einheitsvektor in z-Richtung $\hat{z}$ ergibt [49].

3. Atomare Dispersion $\Delta\vec{k}_{\text{atom}}$
   Die Phasenänderung aufgrund der Polarisierbarkeit der Atome ist wegen der geringen Dichte des Mediums klein. Sie wird durch die Gleichung $\Delta\vec{k}_{\text{atom}} \approx N_a[\pi\alpha_1 q/\lambda_0 + r_e f_1 \lambda_0/q]\hat{z}$ mit der statischen Polarisierbarkeit α_1, dem klassischen Elektronenradius $r_e = e^2/(4\pi\epsilon_0 m_e c^2)$ und dem Realteil des atomaren Streufaktors f_1 beschrieben.

4. Elektronendispersion $\Delta\vec{k}_{\text{elek}}$
   Die bei der Ionisation des Mediums entstehenden freien Elektronen bewirken einen weiteren Dispersionsterm, der von der Elektronendichte N_e abhängt und damit für Bereiche hoher Laserintensitäten sowie für große Mediumlängen L_{med} infolge der Reabsorption relevant wird: $\Delta\vec{k}_{\text{elek}} \approx -r_e q \lambda_0 N_e\,\hat{z}$. Die ionische Dispersion kann im Allgemeinen aufgrund der reduzierten Polarisierbarkeit vernachlässigt werden.

Die einzelnen Beiträge zur Phasenanpassungsbedingung werden z.B. in den Artikeln [49] bis [53] genauer untersucht, um so die Bedingungen für eine möglichst hohe Erzeugungseffizienz sowie die Kohärenzeigenschaften der Harmonischenstrahlung abzuleiten. Eine aktuellere Übersicht über die Propagationseffekte findet man in Ref. [54], in der auch die unterschiedlichen Phasenanpassungsbedingungen für die langen und kurzen Trajektorien dargelegt sind.

Nach Constant *et al.* [55] hängt die Anzahl der in der q-ten Harmonischen emittierten Photonen N_{out} folgendermaßen von den charakteristischen Längen ab:

$$N_{\text{out}} \propto N_a^2 D_q^2 \frac{4L_{\text{abs}}^2}{1 + 4\pi^2(L_{\text{abs}}^2/L_{\text{coh}}^2)} \times \left[1 + \exp\left(-\frac{L_{\text{med}}}{L_{\text{abs}}}\right) - 2\cos\left(\frac{\pi L_{\text{med}}}{L_{\text{coh}}}\right)\exp\left(-\frac{L_{\text{med}}}{2L_{\text{abs}}}\right)\right]. \tag{2.31}$$

Daraus ergeben sich die Optimierungsbedingungen $L_{\text{med}} > 3L_{\text{abs}}$ und $L_{\text{coh}} > 5L_{\text{abs}}$, die sicherstellen, dass die Harmonischenausbeute mehr als der halben maximalen Photonenzahl entspricht. Diese wird für $L_{\text{coh}} \gg L_{\text{abs}}$ und $L_{\text{med}} \gg L_{\text{abs}}$ asymptotisch erreicht. Entscheidend für die mit der Harmonischenstrahlung durchgeführten Photoemissionsspektroskopieexperimente ist die Anzahl der im Akzeptanzbereich der fokussierenden Optik emittierten Photonen und damit die Divergenz θ_j der bei Durchlaufen der Trajektorie j erzeugten q-ten Harmonischen. Sie lässt sich nach

Ref. [56] mit Hilfe folgender Formel abschätzen:

$$\theta_j = \frac{\lambda_q}{\pi W_q}\sqrt{1 + 4\alpha_j^2 I^2 \frac{W_q^4}{W_0^4}}\,, \tag{2.32}$$

wobei $W_{0/q}$ den minimalen Strahlradius bezeichnet (Index q für die betrachtete Harmonische, Index 0 für die Fundamentale).[8] Nach Optimierung der für die Harmonischenerzeugung relevanten Parameter wie der Laserintensität, der Brennweite der fokussierenden Optik, der Fokusposition relativ zum Target, der Gasdichte sowie der Mediumlänge sind von Hergott *et al.* in Xenon Harmonischenenergien von mehr als 1 µJ erzielt worden [59].

Ein weiterer wichtiger Parameter zur Beeinflussung des Harmonischenspektrums ist der Chirp der Laserpulse, der für geringe Gasdrücke und moderate Laserintensitäten zuerst in Ref. [60] betrachtet wurde. Zur Charakterisierung der zeitlichen Modulation der Phase wird der lineare Chirpkoeffizient b_j^q verwendet, der über die negative zweite Ableitung der Phase nach der Zeit im Pulsmaximum definiert ist und sich für die Harmonischen durch die Gleichung

$$b_j^q \equiv -\frac{\partial^2 \Phi_j^q}{\partial t^2} \approx 8\ln(2)\frac{I}{\tau_0^2}\underbrace{\frac{\partial \Phi_j^q}{\partial I}}_{-\alpha_j} \tag{2.33}$$

mit der Pulsdauer τ_0 des Laserpulses annähern lässt [61]. Wegen $\partial\Phi_j^q/\partial I < 0$ ist der durch die Laserpulsform induzierte Chirp negativ und kann durch einen positiven Chirp der Fundamentalen $\Phi_0(t) = -\omega_0 t - b_0 t^2/2$ mit $b_0 > 0$ kompensiert werden. Für hohe Laserintensitäten spielt die Selbstphasenmodulation im Medium eine Rolle, die einen positiven Chirp bewirkt und dem zuvor genannten Effekt entgegenwirkt [62, 63]. Der Chirp der Fundamentalen kann zum Beispiel durch eine Variation des Gitterabstands δz im Kompressor des Lasersystems beeinflusst werden, wodurch sich der lineare Chirpkoeffizient folgendermaßen ändert [64]:

$$b_0(\delta z) = \frac{(4\ln 2)^2 \cdot \beta(\delta z)}{T_0^4 + [4\ln 2 \cdot \beta(\delta z)]^2} \tag{2.34}$$

mit $\beta(\delta z) = \partial^2\tilde{\Phi}_0(\omega)/\partial\omega^2\big|_{\omega=\omega_0}$ (*group delay dispersion*) und der Fourier-limitierten minimalen Pulsdauer[9] T_0.

[8] Für die 57. Harmonische mit einer Wellenlänge von 14,04 nm, für eine Strahlbreite von $W_0 = 55\,\mu\text{m}$ und für eine Laserintensität von $1,5 \cdot 10^{15}\,\text{W/cm}^2$ ergibt sich unter der Annahme von $W_q = W_0$ sowie mit $\alpha \approx 1 \cdot 10^{-14}\,\text{cm}^2/\text{W}$ (gilt im Plateau-Bereich nahezu unabhängig von der Laserintensität für die kurze Trajektorie [57, 58]) eine Divergenz von 2,4 mrad.

[9] Aus dem Pulsdauer-Bandbreite-Produkt $\Delta\nu \cdot T_0 = 0,44$ bzw. $\frac{c_0\,\Delta\lambda\,T_0}{\lambda^2 - \Delta\lambda^2/4} = 0,44$ für Gauß-Pulse [22] ergibt sich für ein um die Zentralwellenlänge $\lambda = 800\,\text{nm}$ herum zentriertes Spektrum mit einer Breite von $\Delta\lambda = 50\,\text{nm}$ eine bandbreitenbegrenzte Pulsdauer von etwa 19 fs. Die gemessene Dauer der Laserpulse beträgt dagegen um die 30 fs, da u.a. das Spektrum nicht gaußförmig, sondern in der Mitte abgeflacht ist.

Die Möglichkeit zur Erhaltung der Phasenanpassungsbedingung über einen großen Bereich im Medium bieten sogenannte *Quasi-Phasenanpassungstechniken*, die insbesondere bei hohem Ionisationsgrad interessant werden, da sich hier die negative Elektronendispersion zu der ebenfalls negativen geometrischen Dispersion addiert und so die Phasenanpassung beim Durchlaufen des Mediums mehr und mehr zerstört wird. Zur Vermeidung dieses Effekts werden z.B. ein Array von Gasdüsen mit abgestimmten Abständen und Gasdrücken oder eine gasgefüllte Hohlfaser mit moduliertem Durchmesser eingesetzt [48, 65, 66]. Andere Targetmaterialien wie Moleküle, Cluster oder Festkörperoberflächen werden ebenfalls hinsichtlich der Harmonischenerzeugung untersucht; auch Experimente mit zweifarbigem anregenden Laserfeld werden durchgeführt und bieten neue Möglichkeiten zur Steigerung der Erzeugungseffizienz [67–69].

2.4 Photoemissionsspektroskopie

Die im vorherigen Kapitel beschriebene Harmonischenstrahlung im XUV-Bereich soll dazu genutzt werden, die Atome von (magnetisierten) Festkörperoberflächen durch den Photoeffekt zu ionisieren. Eine Analyse der kinetischen Energien der emittierten Elektronen gibt zum einen Aufschluss über die atomspezifischen Eigenschaften und zum anderen über die chemische und magnetische Umgebung der Atome. In diesem Kapitel werden die Besonderheiten der Photoemissionsspektroskopie an Oberflächen verdeutlicht, da die Einbettung der Atome in die Kristallstruktur des Festkörpers Auswirkungen auf die Lage und Form der beobachteten Peaks im Energiespektrum hat. Neben Anregungen im Fermi-Gas der Leitungsbandelektronen durch das positiv geladene Rumpfloch kommt es zu inelastischen Stoß- und Streuprozessen des freigesetzten Elektrons mit anderen Elektronen und Ionenrümpfen, wodurch u.a. Sekundärelektronen vorwiegend geringer kinetischer Energien entstehen. Nur ein kleiner Teil der Elektronen tritt deshalb ohne Energieverlust ins Vakuum aus, so dass die Festkörperspektren durch ein hohes Untergrundsignal gekennzeichnet sind, das bei der quantitativen Auswertung berücksichtigt werden muss.

2.4.1 3-Stufen-Prozess der Photoemission

Bei der Photoemissionsspektroskopie wird das zu untersuchende Material mit Photonen der Energie $\hbar\omega$ bestrahlt und die kinetische Energie der durch den Photoeffekt freigesetzten Elektronen detektiert. Für ein Gas gilt die Beziehung $E_{\mathrm{kin}} = \hbar\omega - E_{\mathrm{B}}$ und für Festkörper $E_{\mathrm{kin}} = \hbar\omega - \Phi - E_{\mathrm{B}}$. Da für Festkörper die Bindungsenergie der Elektronen E_{B} relativ zur Fermi-Energie E_{F} angegeben, die kinetische Energie E_{kin} im Experiment jedoch relativ zum Vakuumlevel gemessen wird, muss im Gegensatz zum atomaren Gas die Austrittsarbeit Φ als Differenzenergie zwischen Fermi- und Vakuumlevel berücksichtigt werden. Abbildung 2.5b zeigt die inelastische mittlere freie Weglänge, die die Elektronen ohne Energieverlust im Material zurücklegen, in Abhängigkeit von der kinetischen Anfangsenergie. Bis auf geringe Abweichungen bedingt durch die elektronische Struktur des Festkörpermaterials folgt sie einer universellen Kurve [70] mit einem Minimum zwischen 2 und 10 Å für kinetische Energien von 20 bis 150 eV und liegt damit im Bereich nur weniger atomarer Monolagen insbesondere für die hier betrachtete Anregungsenergie von etwa 90 eV. Aus dieser Kurve lässt sich die hohe Oberflächensensitivität der Messmethode ablesen, so dass für die Experimente UHV-Bedingungen und eine In-situ-Präparation der zu untersuchenden Proben nötig sind, weil sonst die von Verunreinigungen und Adsorbaten oder aus einer Oxidschicht stammenden Elektronen das eigentliche Messsignal überdecken.

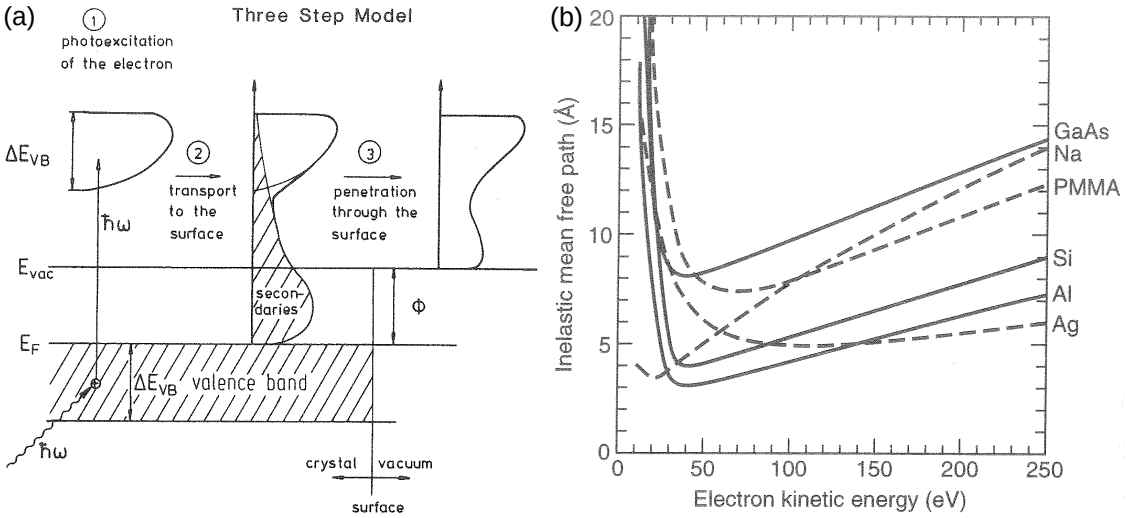


Abbildung 2.5: (a) Photoemissionsspektroskopie als 3-Stufen-Prozess. 1 – Photoanregung der Elektronen. 2 – Transport zur Oberfläche und dabei Entstehung von Sekundärelektronen. 3 – Durchdringung der Oberflächenbarriere und Austritt ins Vakuum. Grafik entnommen aus [71]. (b) Inelastische mittlere freie Weglänge der Elektronen als Funktion ihrer kinetischen Energie für verschiedene Materialien (aus [38]).

Die Photoemission kann als 3-Stufen-Prozess beschrieben werden (siehe Abb. 2.5a, [72]): Im ersten Schritt wird das Elektron durch die Absorption eines Photons angeregt, was zu dem sogenannten *Primärspektrum* P_{prim} mit den für das Festkörpermaterial charakteristischen Linien plus den intrinsischen Plasmonanregungen führt. Den zweiten und dritten Schritt bilden der Transport des Elektrons zur Oberfläche und der Austritt ins Vakuum (*Sekundärspektrum* P_{sek}) mit den dabei stattfindenden Anregungs- und Streuprozessen (extrinsische Plasmonen, Oberflächenplasmonen, inelastisch gestreute Elektronen). Unter Verwendung der Beschreibung und Notation in Ref. [71] ergibt sich für das Photoelektronenspektrum P_{ges} eines Festkörpers:

$$P_{\text{ges}}(\omega) = \underbrace{F_0(\omega) + F_i(\omega)}_{P_{\text{prim}}} + \underbrace{P_b(\omega) + P_s(\omega) + \bar{B}(\omega)}_{P_{\text{sek}}} \,. \tag{2.35}$$

Hierbei ist F_0 die Hauptlinie der nach der Photoanregung ohne Energieverlust austretenden Elektronen, die aufgrund der Wechselwirkung der Leitungsbandelektronen in Metallen mit dem positiv geladenen Photoloch eine asymmetrische Form aufweist (theoretisch beschrieben durch Doniach und Šunjić [73]):

$$F_0(\omega) = \frac{\Gamma(1-\alpha)\cos[\pi\alpha/2 + (1-\alpha)\arctan(\omega/\gamma)]}{(\omega^2+\gamma^2)^{(1-\alpha)/2}} \,. \tag{2.36}$$

Ist der Asymmetrieparameter α gleich Null, so erhält man eine Lorentz-Linienform $L(\omega,\gamma)$ mit der natürlichen Linienbreite (FWHM) 2γ, die eine symmetrische Spektrallinie z.B. für den Fall von Isolatoren oder Halbleitern beschreibt. Das Rumpf-

loch kann als ein instantan angeschaltetes, starkes lokales Potential angesehen werden, das infolge der Abschirmung durch die umgebenden Elektronen und der damit verbundenen Umordnung des Elektronensystems zu quantisierten (Plasmonen) und kontinuierlichen Anregungen (z.B. Elektron-Loch-Paarbildung) führt. F_i ist der Beitrag der intrinsischen Plasmonen, den quantisierten Anregungen im Fermi-Gas der Leitungsbandelektronen:

$$F_i(\omega) = \sum_{n=1}^{\infty} \frac{b^n}{n!} \int F_0(\omega + \omega') L(\omega' - n\omega_p, n\gamma_p) d\omega' \tag{2.37}$$

mit der Plasmafrequenz $\omega_p = \sqrt{\rho e^2/(\epsilon_0 m_e)}$ und der Dichte des Elektronengases ρ. In gleicher Weise können die extrinsischen und Oberflächenplasmonen P_b und P_s als Faltung von Lorentz-Linien der Frequenzen $\omega_n = \omega_0 - n\omega_p$ und Breiten $n\gamma_p$ mit der Hauptlinie F_0 mit jeweils charakteristischen Amplitudenverhältnissen beschrieben werden [74]. $\bar{B}(\omega)$ ist der Untergrund, hervorgerufen durch inelastische Elektron-Elektron- oder Elektron-Ion-Streuprozesse ohne die Plasmonenanregungen plus den Sekundärelektronen.

2.4.2 Untergrundabzug

Um die Peaks im Spektrum quantitativ zu erfassen, muss dieser Untergrund insbesondere bei kleinen Signalen von den gemessenen Daten abgezogen werden. Für schmale Bereiche um die Peaks herum wird neben einem noch einfacheren linearen Untergrund häufig ein Polynom 2. Grades für den Untergrundfit herangezogen (vor allem bei Isolatoren angewendet). Für Metalle und im Fall hoher Photonenenergien (XPS-Spektren), bei denen der Untergrund vor und nach den Peaks konstant ist, wird vielfach das von Shirley eingeführte Iterationsverfahren verwendet [75]:

$$P_n(i) = P_{\text{gem}}(i) - k_n \sum_{j=i+1}^{i_{\max}} P_{n-1}(j)\, \Delta E(j) \tag{2.38}$$

mit dem im i-ten Energieintervall $\Delta E(i) = E(i+1) - E(i)$ gemessenen Signalwert $P_{\text{gem}}(i)$ sowie dem korrigierten Wert $P_n(i)$ und dem anzupassenden Parameter k_n nach der n-ten Iteration. Das Iterationsverfahren wird im Energieintervall $E_{\min} < E < E_{\max}$ mit den zugehörigen Indizes $i_{\min} < j < i_{\max}$ sowie unter der Randbedingung $P_n(i_{\min}) = 0$ angewendet und konvergiert nach wenigen Iterationen. Bei den hier vorliegenden niedrigen Anregungsenergien um die 90 eV dominiert allerdings insbesondere im Bereich der betrachteten Fe 3p-Linie ($E_{\text{kin}} \approx 32$ eV) der stark ansteigende Sekundärelektronenuntergrund B_{sek}, der für kleine Energieintervalle von etwa 20 eV am besten durch einen exponentiellen Abfall dargestellt werden

kann. Eine Beschreibung des Untergrundes des gesamten Spektrums bzw. größerer Energiebereiche ermöglicht der folgende Ansatz:

$$B(E) = \int_{E}^{E_{\max}} A(E')\, P_{\text{gem}}(E') dE' \tag{2.39}$$

mit der Maximalenergie der Elektronen $E_{\max}$ (z.B. kurz oberhalb der Fermi-Kante), ab der kein Elektronensignal mehr detektiert wird oder lediglich ein konstanter Untergrund vorhanden ist. Hierbei wird davon ausgegangen, dass alle Elektronen mit kinetischen Energien $E' > E$ mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit $A(E')$ zum Untergrund beitragen. Li *et al.* haben zur Auswertung von UPS-Spektren den konstanten Faktor

$$A_{\text{UPS}} = \frac{P_{\text{gem}}(E_{\min})}{\int_{E_{\min}}^{E_{\max}} P_{\text{gem}}(E') dE'} \tag{2.40}$$

unter der Annahme $P_{\text{gem}}(E_{\max}) = 0$ verwendet [76]. Eine theoretische Behandlung der Energieverluste beim Transport der Elektronen zur Oberfläche führt zu einem universellen Wirkungsquerschnitt der Form

$$A_{\text{T}}(E') = \frac{B_1 \cdot (E' - E)}{\left[C + (E' - E)^2\right]^2} \tag{2.41}$$

mit $C = 1643\,\text{eV}^2$, wobei B_1 meistens als freier Parameter an das Spektrum angepasst wird. B_1 ist ursprünglich durch die Gleichung $B_1 = 2866\, L/(L{+}s\, \cos\theta)\,\text{eV}^2$ mit der inelastischen freien Weglänge der Elektronen s, dem Emissionswinkel θ gemessen zur Oberflächennormalen sowie dem Parameter L, der für inhomogene Materialien Informationen über das Konzentrationsprofil enthält, bestimmt. Nach Einsetzen von $A_{\text{T}}(E')$ in Gleichung 2.39 erhält man folgenden Ausdruck für die korrigierten Signalwerte (als *Tougaard-Methode* bezeichneter Untergrundabzug, [77, 78]):

$$P(i) = P_{\text{gem}}(i) - B_1 \sum_{j=i+1}^{i_{\max}} \frac{E(j) - E(i)}{\left(C + [E(j) - E(i)]^2\right)^2}\, P_{\text{gem}}(j)\, \Delta E(j)\,. \tag{2.42}$$

Der Untergrundabzug nach Tougaard bietet im Vergleich zu den anderen genannten Methoden (polynomialer, exponentieller, Shirley- oder UPS-Untergrund) den Vorteil, dass er unabhängig von dem gewählten Endpunkt $E_{\min}$ auf der niederenergetischen Seite des Peaks ist (siehe Abb. 2.6). Einen Vergleich der Methoden zum Untergrundabzug findet man in Ref. [79]; für eine tiefer gehende Beschreibung des Untergrundabzugs für quantitative Untersuchungen siehe auch Ref. [80].

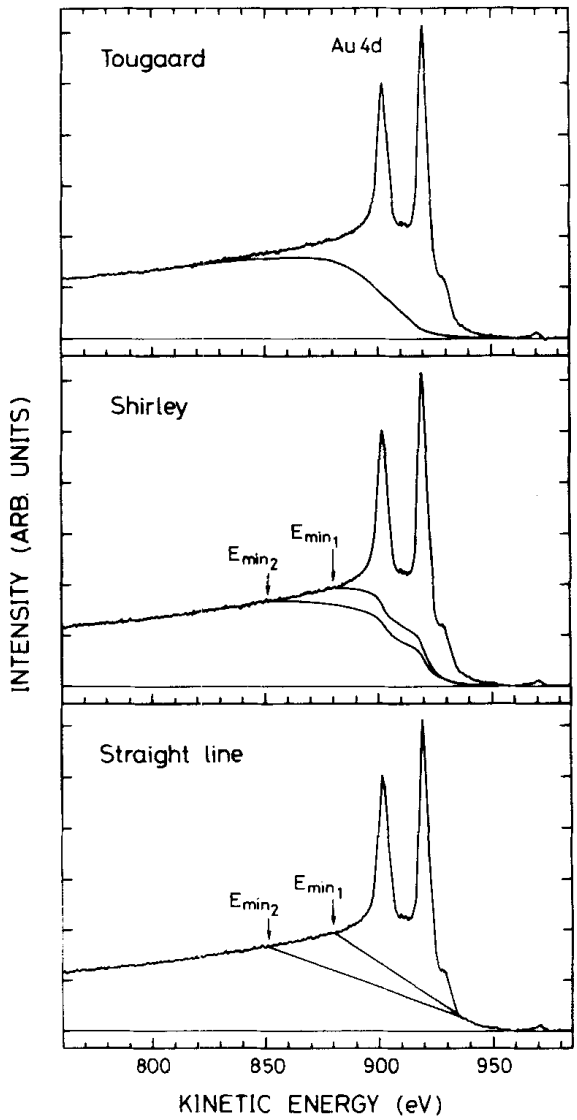


Abbildung 2.6: Vergleich der unterschiedlichen Methoden des Untergrundabzugs bei einem Au 4d-Spektrum. Während der Tougaard-Untergrund bei geeigneter Wahl des Parameters B_1 in einem weiten Bereich auf der niederenergetischen Seite der Peakstruktur sehr gut mit dem gemessenen Spektrum übereinstimmt, hängt die mit den anderen beiden Methoden bestimmte Peakamplitude und -fläche von der Wahl von $E_{\min}$ ab. Entnommen aus [79].

2.5 Magnetischer Lineardichroismus in der Winkelverteilung (MLDAD an der Fe 3p-Kante)

Nach der Beschreibung der generellen Charakteristika der Photoemissionsspektroskopie an Oberflächen beschäftigt sich dieses Kapitel mit der Untersuchung des Oberflächenmagnetismus mit Hilfe dieser Messmethode. Da die XUV-Strahlung der Hohe-Harmonische-Quelle linear polarisiert ist, kommt als Kontrastmechanismus zur Unterscheidung verschiedener Magnetisierungsrichtungen der *Magnetische Lineardichroismus in der Winkelverteilung* in Frage. Die Detektion der Photoelektronen mittels eines Flugzeitspektrometers impliziert bereits eine winkelaufgelöste Messung, da lediglich Elektronen aus einem kleinen Raumwinkelbereich den Detektor erreichen können. Der beobachtete Unterschied im Spektrum bei einer Umpolung der Magnetisierungsrichtung hängt von der Wechselwirkung zwischen dem Spinsystem der Leitungsbandelektronen und den Elektronen der inneren Schalen der Atome ab. Die Ausgangszustände werden dadurch in Unterniveaus aufgespalten, für die sich bei Umkehr der Magnetisierungsrichtung in bestimmten Messgeometrien unterschiedliche Ionisationswirkungsquerschnitte ergeben. Da die Unterzustände aufgrund der Linienverbreiterung im Allgemeinen nicht aufgelöst werden können, zeigt sich der magnetische Dichroismus in einer Schwerpunktsverschiebung der Peakstruktur. Um die Funktionalität der aufgebauten Messapparatur nachzuweisen, bietet sich eine Messung an einem in der Literatur gut beschriebenen magnetischen System an. In dieser Arbeit wird daher der Spezialfall des Dichroismus der Fe 3p-Elektronen ($E_\mathrm{B} \approx 52\,\mathrm{eV}$) behandelt, die mit den erreichbaren Photonenenergien freigesetzt werden können. Der Effekt kann im Rahmen eines Ein-Elektronen-Grundzustandsmodells erklärt werden, aus dem sich auch die Winkel- und Energieabhängigkeit ergibt.

2.5.1 Ein-Elektronen-Grundzustandsmodell

Nach der Entdeckung von Baumgarten *et al.* [81], dass neben der Reflexion und Transmission von zirkular polarisiertem XUV- bzw. Röntgenlicht auch die Photoelektronenemission von der Magnetisierungsrichtung des zu untersuchenden Materials abhängt, hat sich die Photoemissionsspektroskopie neben den rein optischen Messverfahren als eine alternative Untersuchungsmethode des Magnetismus von Oberflächen und dünnen Schichten etabliert. Neben ihrer Oberflächensensitivität bietet sie die Möglichkeit, die elementspezifischen magnetischen Eigenschaften der Proben mit einer hohen Orts- und Zeitauflösung zu untersuchen. Wie zuerst von Roth *et al.* anhand der Fe 3p-Linie gezeigt, ist auch bei der Verwendung von linear polarisiertem Licht ein Unterschied in den Photoemissionsspektren bei einer Umkeh-

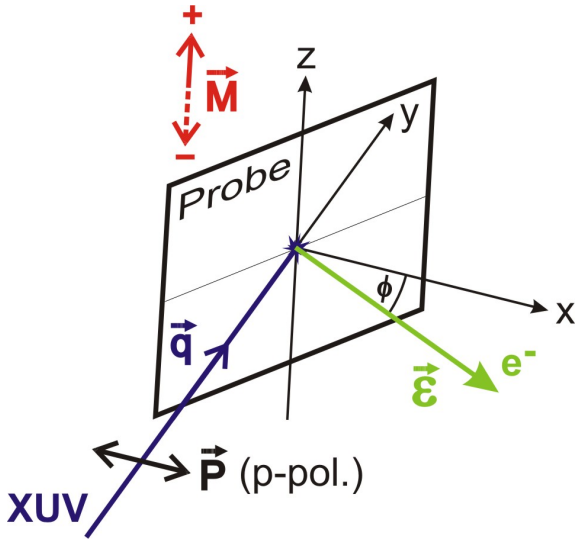


Abbildung 2.7: Messgeometrie für das MLDAD-Experiment.

rung der Magnetisierungsrichtung erkennbar [82, 83]. In Anlehnung an diese Arbeiten wurden im Rahmen der vorliegenden Dissertation ebenfalls Messungen an Eisen mit der in Abbildung 2.7 dargestellten Messgeometrie durchgeführt. Der Wellenvektor $\vec{q}$ der p-polarisierten XUV-Strahlung (Polarisationsvektor $\vec{P}$ in x-Richtung) und die Detektionsrichtung der Elektronen $\vec{\varepsilon}$ liegen dabei in einer Ebene senkrecht zur Probenoberfläche. Die Probe wird in-plane aufmagnetisiert, so dass der Magnetisierungsvektor $\vec{M}$ senkrecht auf der durch die Vektoren $\vec{q}$ und $\vec{\varepsilon}$ aufgespannten Ebene steht ($M+$ zeigt dabei in die positive und $M-$ in die negative z-Richtung).

Die theoretische Beschreibung des magnetischen Dichroismussignals in dieser geometrischen Messanordnung folgt den Ausführungen von Menchero [84, 85] und van der Laan [86,87], die den MLDAD der P-Niveaus von Ferromagneten im Rahmen eines Ein-Elektronen-Grundzustandsmodells behandeln. Hierbei ist der Spin-Bahn-aufgespaltene Ausgangszustand $j = 3/2$ bzw. $j = 1/2$ des Rumpfelektrons zusätzlich aufgrund der Wechselwirkung mit den Spins der 3d-Valenzelektronen in Unterzustände gemäß den Werten der magnetischen Quantenzahl m_j aufgespalten. Der auf die wesentlichen Terme reduzierte Hamiltonoperator H kann in folgender Form geschrieben werden, wobei die aus diesem Ansatz folgenden energetischen Positionen der Unterniveaus lediglich relativ zur Lage des atomaren P-Grundzustandslevels ohne Wechselwirkungen bestimmt sind (die Bindungsenergie ist hier als positiver Wert definiert):

$$H = \zeta \vec{l}\vec{s} + H_s \, s_z \tag{2.43}$$

mit dem Kopplungsparameter für die Spin-Bahn-Wechselwirkung ζ und dem Spinfeld H_s, das die Austauschwechselwirkung zwischen dem Rumpfelektronenspin und

dem auf den Magnetisierungsvektor ausgerichteten Gesamtspin der Valenzelektronen beschreibt. In dem Modell werden die bei Eisen stark delokalisierten 3d-Valenzelektronen im LS-Kopplungslimit betrachtet, wobei der Einfluss des Bahndrehimpulses auf den Rumpfelektronenzustand vernachlässigt werden kann [86]. In der Basis der sechs $|j\, m_j\rangle$-Zustände hat der Hamiltonoperator die Matrixdarstellung

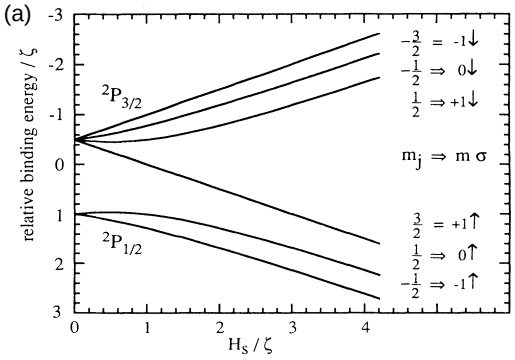
$$H = -\frac{1}{6}\begin{pmatrix} 3\zeta{+}3H_s & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 3\zeta{+}H_s & 0 & 0 & \sqrt{8}H_s & 0 \\ 0 & 0 & 3\zeta{-}H_s & 0 & 0 & \sqrt{8}H_s \\ 0 & 0 & 0 & 3\zeta{-}3H_s & 0 & 0 \\ 0 & \sqrt{8}H_s & 0 & 0 & -6\zeta{-}H_s & 0 \\ 0 & 0 & \sqrt{8}H_s & 0 & 0 & -6\zeta{+}H_s \end{pmatrix} \tag{2.44}$$

mit den Energieeigenwerten

$$\begin{aligned} E_{3/2,\pm 3/2} &= -\frac{1}{2}\zeta \pm \frac{1}{2}H_s \\ E_{3/2,\pm 1/2} &= \frac{1}{4}\zeta + \frac{1}{4}\sqrt{9\zeta^2 + 4H_s^2 \pm 4\zeta H_s} \\ E_{1/2,\pm 1/2} &= \frac{1}{4}\zeta - \frac{1}{4}\sqrt{9\zeta^2 + 4H_s^2 \pm 4\zeta H_s}\,. \end{aligned} \tag{2.45}$$

Eine Umkehrung der Magnetisierungsrichtung $H_s \rightarrow -H_s$ vertauscht die Zustände E_{j,m_j} und $E_{j,-m_j}$. Die von Henk *et al.* durch numerische Rechnungen im Rahmen eines komplexeren, relativistischen Modells der Photoemission ermittelten energetischen Positionen stimmen bei entsprechender Wahl der Parameter ζ und H_s sehr gut mit den aus dem Ein-Elektronen-Modell erhaltenen Werten gemäß Gleichung 2.45 überein [88].

(a)



(b)

j	m_j	jj	LS
3/2	−3/2	$\lvert -1\downarrow\rangle$	$\lvert -1\downarrow\rangle$
	−1/2	$\sqrt{2/3}\,\lvert 0\downarrow\rangle + \sqrt{1/3}\,\lvert -1\uparrow\rangle$	$\lvert 0\downarrow\rangle$
	1/2	$\sqrt{1/3}\,\lvert 1\downarrow\rangle + \sqrt{2/3}\,\lvert 0\uparrow\rangle$	$\lvert 1\downarrow\rangle$
	3/2	$\lvert 1\uparrow\rangle$	$\lvert 1\uparrow\rangle$
1/2	1/2	$\sqrt{2/3}\,\lvert 1\downarrow\rangle - \sqrt{1/3}\,\lvert 0\uparrow\rangle$	$\lvert 0\uparrow\rangle$
	−1/2	$\sqrt{1/3}\,\lvert 0\downarrow\rangle - \sqrt{2/3}\,\lvert -1\uparrow\rangle$	$\lvert -1\uparrow\rangle$

Abbildung 2.8: (a) Energetische Positionen der P-Unterniveaus als Funktion des Spinfeldes H_s in Einheiten von ζ. (b) jm_j-Unterniveaus eines P-Levels in der $m\sigma$-Darstellung im jj- und LS-Kopplungslimit. Entnommen aus [86].

Abbildung 2.8a zeigt die Lage und Aufspaltung der Energielevel in Abhängigkeit von der relativen Stärke der Wechselwirkungen H_s/ζ nach van der Laan. Tobin und

Schumann haben einen leicht abgewandelten Ansatz für die beteiligten Zustände verwendet, der aber zu gleichen Ergebnissen führt [89]. Für $H_s/\zeta \ll 1$, d.h. nahe dem Grenzfall der jj-Kopplung der Drehimpulse, ist der $P_{3/2}$-Zustand in $2j+1=4$ und das $P_{1/2}$-Niveau dementsprechend in zwei Unterzustände im energetischen Abstand von jeweils $H_s/3$ aufgespalten. Gilt dagegen $H_s/\zeta \gg 1$, also näherungsweise die LS-Kopplung, so liegen ein Spin-up- und ein Spin-down-Zustand mit jeweils drei Unterniveaus im Abstand von $\zeta/2$ vor. Während für den 2p-Zustand die Spin-Bahn-Wechselwirkung um etwa eine Größenordnung stärker ist als die Austauschwechselwirkung, gilt für die schwächer gebundenen 3p-Elektronen $H_s/\zeta \approx 1$, so dass hier der Fall intermediärer Kopplung vorliegt. Im Allgemeinen hybridisieren also verschiedene j-Zustände, wie man auch anhand der Außerdiagonalelemente in der Matrixdarstellung des Hamiltonoperators sehen kann, so dass nur noch m_j aufgrund der Rotationssymmetrie um die Magnetisierungsachse als „gute“ Quantenzahl übrigbleibt. C. Bethke hat in seiner Dissertation die von verschiedenen Autoren experimentell und theoretisch bestimmten Werte für ζ und H_s bei den Fe 3p-Elektronen angegeben [90]; der Mittelwert von $\zeta = 0,92\,\mathrm{eV}$ und $H_s = 1,15\,\mathrm{eV}$ liefert relative Energien von $1,27\,\mathrm{eV}$, $0,97\,\mathrm{eV}$, $0,12\,\mathrm{eV}$, $-0,51\,\mathrm{eV}$, $-0,81\,\mathrm{eV}$ und $-1,04\,\mathrm{eV}$. Zum Vergleich ist die Wechselwirkung eines Elektrons im Atom mit einem äußeren Magnetfeld in z-Richtung mit der Flussdichte B_z (*Zeeman-Effekt*) durch den Hamiltonoperator $H_{\mathrm{Zee}} = \mu_{\mathrm{B}}/\mu_0\, B_z(l+2s)$ gegeben, so dass $H_{\mathrm{Zee}} \approx 0,1\,\mathrm{meV}$ für den Fall von $l=1$, $s=1/2$ und $B_z = 1\,\mathrm{T}$ gilt [4].

Durch Diagonalisieren der Matrix aus Gleichung 2.44 erhält man die winkel- und spinabhängigen Eigenzustände $\Phi_\sigma(\theta,\phi)$, die zusammen mit dem Radialteil $F(r)$ die Ausgangszustände des Atoms vor der Emission des Photoelektrons $|\Psi_i\rangle = |F(r);\Phi_\sigma(\theta,\phi)\rangle$ bilden. Sei $|\Psi_f(\vec{\varepsilon},\sigma)\rangle$ die Wellenfunktion des auslaufenden Elektrons mit dem Wellenvektor $\vec{\varepsilon}$ und Spin σ, so lässt sich die Elektronenemission J folgendermaßen beschreiben:

$$J(\vec{P},\vec{\varepsilon},\sigma) \propto \left|\langle\Psi_f(\vec{\varepsilon},\sigma)|\vec{P}\cdot\vec{r}|\Psi_i\rangle\right|^2 \delta(E_{\mathrm{kin}} + E_{\mathrm{B}} + \Phi - \hbar\omega)\,. \tag{2.46}$$

Gleichung 2.46 folgt aus Fermis Goldener Regel für die Übergangsrate

$$R_{i\to f} = \frac{2\pi}{\hbar}\,|M_{if}|^2\rho(E) \tag{2.47}$$

mit der Photoelektronenzustandsdichte $\rho(E) \propto \sqrt{E}$ bei der Energie E. Für den Fall der Wechselwirkung des Elektrons mit einer elektromagnetischen Welle, beschrieben durch das Vektorpotential $\vec{A} = \vec{P}\exp[i(\vec{q}\cdot\vec{r}-\omega t)]$, ergibt sich für das Übergangsmatrixelement M_{if}:

$$M_{if} = \langle\Psi_f|\vec{A}\cdot\vec{p}|\Psi_i\rangle \propto \langle\Psi_f|\exp(i\vec{q}\cdot\vec{r})\,\vec{P}\cdot\vec{\nabla}|\Psi_i\rangle \tag{2.48}$$

mit dem quantenmechanischen Impulsoperator $\vec{p} = -i\hbar\vec{\nabla}$. Unter Verwendung der elektrischen Dipolnäherung $\exp[i(\vec{q} \cdot \vec{r})] \approx 1$ und der Vertauschungsrelation von Hamilton- und Ortsoperator $[H, \vec{r}] = -i\hbar/m\,\vec{p}$ erhält man die gesuchte Beziehung $M_{if} \propto \langle \Psi_f | \vec{P} \cdot \vec{r} | \Psi_i \rangle$.

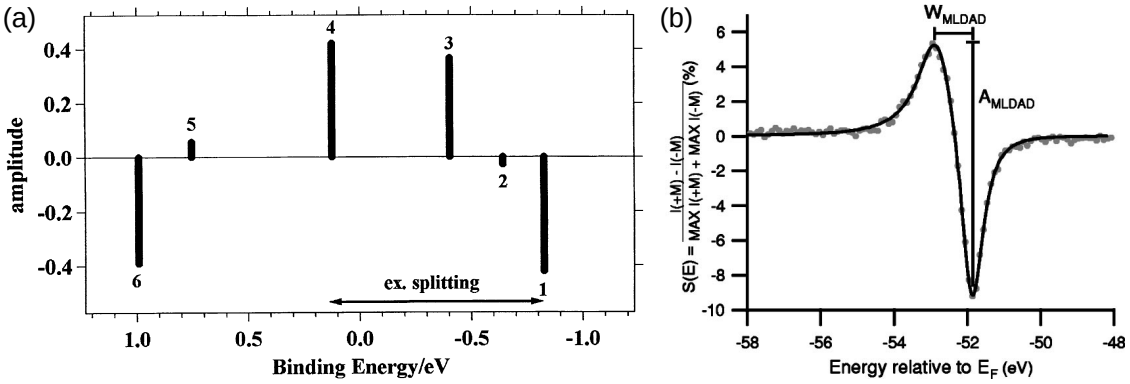


Abbildung 2.9: (a) Histogrammdarstellung des Dichroismus als Differenz der Elektronenemission für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen der einzelnen 3p-Unterzustände für $\zeta = 0,7\,\mathrm{eV}$ und $H_s = 0,95\,\mathrm{eV}$ nach Ref. [89]. (b) Typisches MLDAD-Signal $S(E)$ mit der Breite W_{MLDAD} und Amplitude A_{MLDAD} der Asymmetrie bestimmt aus dem Maximum und Minimum der Kurve. Entnommen aus [91].

Berechnet man nun die Elektronenemission in Abhängigkeit von der Magnetisierungsrichtung für die einzelnen Zustände, so kann man daraus den Dichroismus als Intensitätsdifferenz bestimmen. Anhand von Abb. 2.9a lassen sich relative MLDAD-Amplituden bezogen auf den Zustand 4, dessen Amplitude als +1 definiert sei und für die Anpassung an experimentelle Daten entsprechend skaliert werden muss, von -1 (1), -0,09 (2), +0,88 (3), +0,16 (5) und -0,93 (6) ablesen. Menchero hat die Matrixelemente für die $|j\,m_j\rangle$-Basiszustände, aus denen $|\Psi_i\rangle$ konstruiert werden kann, und $|\Psi_f\rangle$, geschrieben als Superposition sphärischer Wellen, für verschiedene Polarisationsrichtungen tabelliert [84]. Um das experimentell erhaltene MLDAD-Signal – in Abb. 2.9b ist als ein Beispiel aus der Literatur der an $7,9\,\mathrm{ML}$ bcc Fe/Ag(001) gemessene Dichroismus gezeigt – aus der energetischen Lage und der Gewichtung der einzelnen Zustände im Histogramm zu rekonstruieren, müssen die intrinsischen und instrumentell bedingten Verbreiterungen berücksichtigt werden. Die gemessene Linienform ergibt sich aus der Faltung einer Doniach-Sunjic-Funktion aufgrund der Zustandslebensdauer und der Anregungen im Elektronensystem des Festkörpers mit einer Gauß-Kurve aufgrund der Detektorauflösung. Für eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten wird im Allgemeinen eine mit größerer Bindungsenergie zunehmende Lebensdauer der Zustände angenommen [86, 89, 92]. Janke-Gilman *et al.* [91] passen nach einem geeigneten Untergrundabzug direkt eine positive und negative Peakfunktion an das Asymmetriespektrum an, um so die Amplitude A_{MLDAD}

und Breite W_{MLDAD} des Dichroismussignals zu extrahieren. Während die Amplitude für eine fixierte Messgeometrie und Anregungsenergie ein Maß für die magnetische Ordnung $\langle\vec{M}\rangle$ ist[10] und für die Messung von Hysteresekurven und der Temperaturabhängigkeit der Magnetisierung genutzt werden kann, hängt die Breite mit der Aufspaltung der j=±3/2-Unterniveaus zusammen und ist damit nach Gleichung 2.45 ein Maß für die Austauschwechselwirkung bzw. das lokale magnetische Moment, das sich z.B. mit der chemischen Umgebung des Atoms ändert [93–96]. Absolute Werte für die magnetischen Momente kann man durch Kalibrierung der Messungen anhand bekannter Werte aus Neutronenstreuexperimenten oder XMCD-Messungen erhalten. Mit einem Photoelektronenemissionsmikroskop (PEEM) ist unter Ausnutzung des MLDAD die Abbildung von Domänenstrukturen möglich [97].

2.5.2 Winkel- und Energieabhängigkeit

Obwohl die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen bei einer festen Detektionsrichtung der Elektronen und einer fixierten Anregungsenergie gemacht wurden, soll an dieser Stelle die Winkel- und Energieabhängigkeit des MLDAD diskutiert werden, da sich hieraus die ausgewählte Messgeometrie ableitet. Van der Laan betrachtet dazu in Ref. [87] ein P-Level mit den drei durch die magnetische Quantenzahl $m = -1, 0, 1$ und die Besetzungszahlen n_{-1}, n_0 und n_1 charakterisierten Unterniveaus, deren Ortswellenfunktionen in der Form

$$\Psi_{nlm}(r, \theta, \phi) = R_{nl}(r) Y_{lm}(\theta, \phi) \tag{2.49}$$

mit dem Radialteil $R_{nl}(r)$ und den Kugelflächenfunktionen $Y_{lm}(\theta, \phi)$ geschrieben werden können. In gleicher Weise lassen sich die Endzustände

$$\Psi_{f,c\gamma}(r, \vec{\varepsilon}) = R_{fc}(r) Y_{c\gamma}(\vec{\varepsilon}) \exp(-i\delta_c) \tag{2.50}$$

unter Berücksichtigung einer radialen Phasenverschiebung δ_c sowie mit der Drehimpulsquantenzahl c und der magnetischen Quantenzahl $\gamma = -c, \ldots, c$ darstellen. Nach Gleichung 2.46 ergibt sich dann für das magnetisierungsabhängige Elektronensignal in der Detektionsrichtung $\vec{\varepsilon}$:

$$J(\vec{M}, \vec{\varepsilon}) = \sum_m J_m \propto \sum_m n_m \left| \sum_{c\gamma} \langle \Psi_{f,c\gamma} | \vec{P} \cdot \vec{r} | \Psi_{nlm} \rangle \right|^2 , \tag{2.51}$$

wobei in die letzte Summation lediglich die gemäß der Dipolauswahlregeln erlaubten Übergänge $c = l \pm 1$ eingehen. Interferenzeffekte zwischen den beiden Zuständen sind dabei explizit mit einbezogen. Für die hier vorliegende Messgeometrie mit

[10] Im Rahmen dieser Arbeit sind das MLDAD-Signal und somit auch die Magnetisierung über die Fokusfläche gemittelt, aus der die Elektronen emittiert werden.

$\angle(\vec{M},\vec{P}) = \pi/2$, $\theta \equiv \angle(\vec{M},\vec{\epsilon}) = \pi/2$ und $\phi \equiv \angle(\vec{P},\vec{\epsilon}) \in \{0, 2\pi\}$ erhält man nach Einsetzen der Kugelflächenfunktionen den folgenden Ausdruck für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen:

$$4\pi J(M_\pm) = (n_1 + n_{-1})[A + B\cos(2\phi)] \pm (n_1 - n_{-1})C\sin(2\phi)\,. \tag{2.52}$$

Die Umkehrung der Magnetisierung kann man z.B. durch eine Spiegelung an der yz-Ebene erreichen, woraus sich die Transformation $\phi \to \phi' = 2\pi - \phi$ und damit das unterschiedliche Vorzeichen für M_+ und M_- ergibt. Die winkelunabhängigen Koeffizienten A, B und C hängen von den Radialmatrixelementen $R_c = \int R_{fc}R_{nl}\,dr$ und der Phasendifferenz $\delta \equiv \delta_{l-1} - \delta_{l+1}$ ab. Das $m = 0$-Unterniveau liefert in dieser geometrischen Anordnung keinen Beitrag. Aus Gleichung 2.52 folgt unmittelbar das MLDAD-Signal zu

$$4\pi J_{\text{MLDAD}} \equiv 4\pi J(M_+) - 4\pi J(M_-) = (n_1 - n_{-1})2C\sin(2\phi) \tag{2.53}$$

sowie die analog zu Gleichung 2.22 definierte Asymmetrie bei $\phi = 45°$

$$A_{\text{MLDAD}} \equiv \frac{J(M_+) - J(M_-)}{J(M_+) + J(M_-)} = \frac{n_1 - n_{-1}}{n_1 + n_{-1}}\,\frac{C}{A} \equiv Q\,\frac{C}{A}\,. \tag{2.54}$$

Anhand dieser Beziehungen lassen sich die wesentlichen Eigenschaften des MLDAD an der Fe 3p-Kante verstehen:

1. Der Effekt ist für einen Winkel von 45° zwischen Lichtpolarisation und Elektronendetektionsrichtung am größten. Bei Integration über den kompletten Detektionswinkelbereich $0 \leq \phi \leq 2\pi$ verschwindet das Dichroismussignal.

2. Das Emissionsmaximum liegt nach Gleichung 2.52 aufgrund des ersten Terms $A + B\cos(2\phi)$ in x-Richtung und ist für $n_1 \neq n_{-1}$ um den Winkel $\phi_r = 1/2\,\arctan(QC/B)$ gedreht (siehe Abb. 2.10b).

3. Die Asymmetrie ist über die Radialmatrixelemente von der kinetischen Energie der Photoelektronen und damit von der Anregungsenergie abhängig, wie Abb. 2.10a zeigt. Das Maximum liegt bei einer Anregungsenergie um 120 eV, wie weitere experimentelle und theoretische Studien bestätigen [98–100].

Eine genauere Betrachtung der Winkelabhängigkeit des MLDAD zeigt jedoch, dass das Ein-Elektronen-Modell zur Beschreibung nicht ausreicht, sondern insbesondere in kristallinen Substraten die Beugung der auslaufenden Elektronenwelle am Kristallgitter berücksichtigt werden muss [101–104]. Alternative (nicht-relativistische) Ansätze zur Erklärung des MLDAD verfolgen Cherepkov durch die Berechnung der unterschiedlichen Polarisierung der Endzustände (Multipole) [105] sowie Verweyen

et al. durch die Betrachtung der Kopplung des ionischen Endzustands mit dem Rumpfloch [106]. Solche Endzustandsmodelle werden vor allem für lokalisierte und damit stark mit dem Rumpfloch wechselwirkende Valenzelektronen angewendet. Als Beispiele für komplexere Modelle (relativistisch, Vielfachstreuung inkludiert) seien Ref. [88], [99] und [107] genannt.

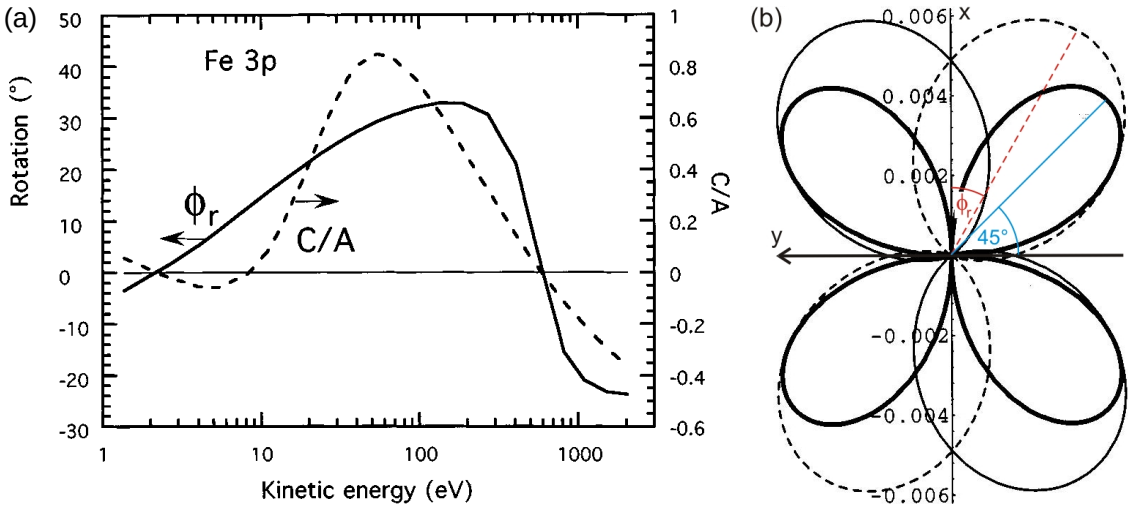


Abbildung 2.10: (a) Abhängigkeit des Asymmetriefaktors C/A (gestrichelte Linie) und des Rotationswinkels ϕ_r (durchgezogene Linie) von der kinetischen Energie der Photoelektronen. (b) Abhängigkeit des Fe 3p-Photoemissionssignals (in a.u.^{2}/Ry) vom Winkel ϕ in der xy-Ebene mit der Magnetisierung entlang der positiven (gestrichelte Linie) und negativen (dünne, durchgezogene Linie) z-Richtung sowie das resultierende MLDAD-Signal (dicke, durchgezogene Linie) bei einer kinetischen Energie von $54,4\,\mathrm{eV}$ ($\phi_r = -29,3°$). Entnommen aus [87].

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

3.1 Femtosekundenlasersystem

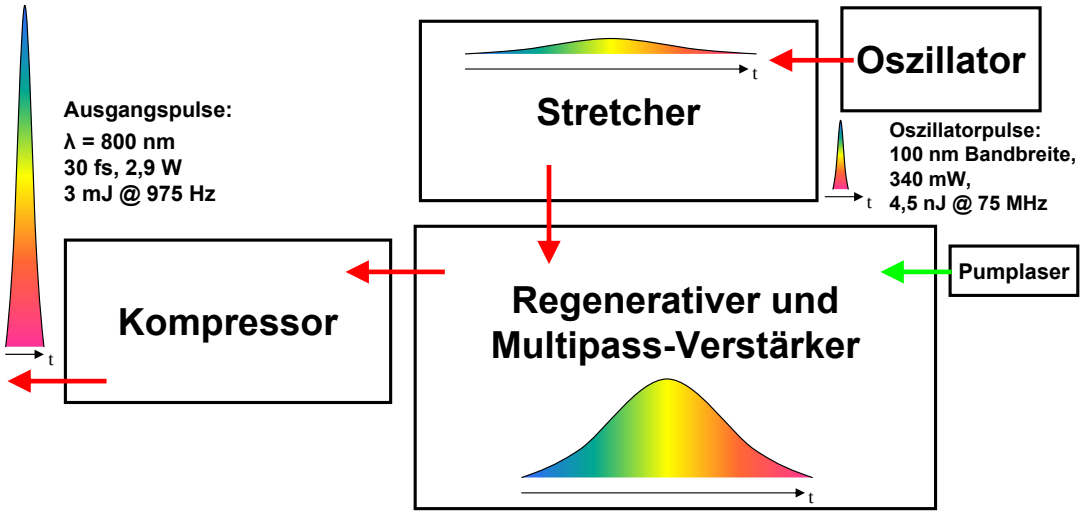


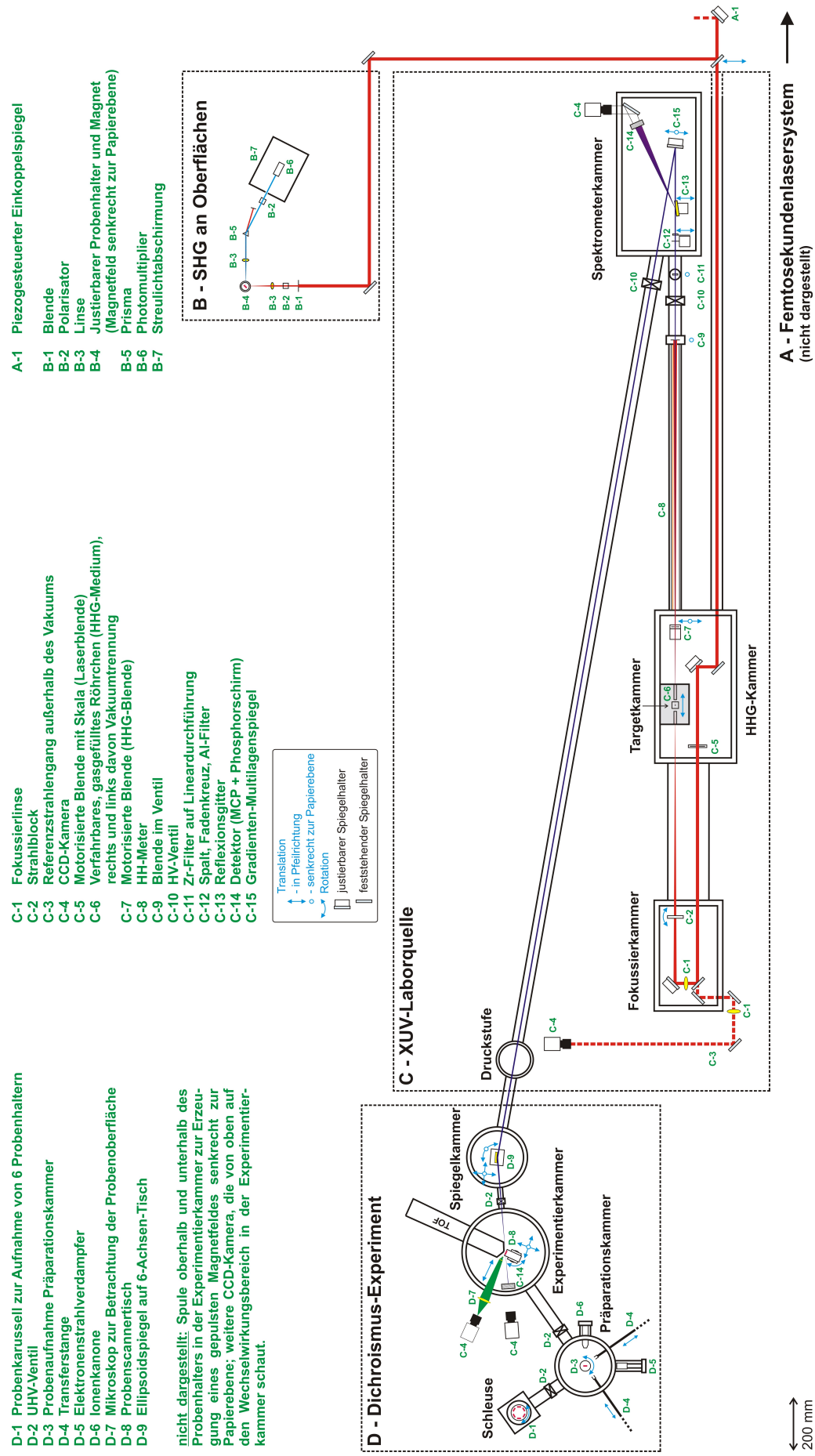
Abbildung 3.1: Schematischer Aufbau des Femtosekundenlasersystems.

Das sowohl für die Erzeugung hoher Harmonischer als auch für die SHG-Experimente verwendete Lasersystem wurde als komplette Einheit von der Firma Amplitude Technologies erworben. Die Grundlage des Lasersystems bildet ein *Oszillator* der Firma Femtolasers (Modell Synergy), bei dem der Titan-Saphir-Kristall als laseraktives Medium durch die TEM_{00}-Mode eines kontinuierlichen, diodengepumpten Festkörperlasers mit einer Emissionswellenlänge von 532 nm (hier Verdi V-5 der Firma Coherent) angeregt wird. Gechirpte, dielektrische Multilagenspiegel im Resonator dienen zur Kontrolle der Dispersion 2. Ordnung, so dass mittels der Kerr-Linsen-Modenkopplung ultrakurze Pulse mit einer spektralen Bandbreite von ca. 100 nm erzeugt werden. Deren nachfolgende Verstärkung basiert auf dem

Prinzip der *Chirped Pulse Amplification* (CPA) [108]. Dabei werden die vom Oszillator ausgekoppelten Pulse in einem *Stretcher* [109] zeitlich gestreckt und erst dann verstärkt, um die Laseroptiken nicht durch zu hohe Leistungsdichten zu zerstören. Die erste Verstärkerstufe bildet ein sogenannter *Regenerativer Verstärker*, in dem der Laserpuls mehrfach in einem Resonator mit einem Titan-Saphir-Kristall als Verstärkermedium umläuft und nach Erreichen der Maximalenergie mittels einer Pockelszelle aus der Kavität ausgekoppelt wird. Danach wird der Puls in der zweiten Verstärkerstufe über eine entsprechende Anordnung von 10 Spiegeln fünfmal durch einen weiteren Titan-Saphir-Kristall geschickt (*Multipass-Verstärker*), der wie auch der Kristall im Regenerativen Verstärker von dem Lasermodell DM30-527 der Firma Photonics Industries gepumpt wird. Nach Durchlaufen eines *Gitter-Kompressors* stehen für die Experimente typischerweise **Laserpulse mit Energien von 3 mJ und Pulsdauern von 30 fs bei einer Repetitionsrate von 975 Hz** zur Verfügung. Die mittlere Pulsenergie, die Pulsdauer und das Spektrum können mittels kommerziell erhältlicher Messgeräte (Leistungsmesskopf, SPIDER[1], Spektrometer) im täglichen Betrieb kontrolliert und auf die Sollwerte eingestellt werden.

Abbildung 3.2 (nächste Seite): Gesamtaufbau der Apparatur bestehend aus dem Messplatz für die SHG-Erzeugung an Oberflächen (Teil B), der XUV-Laborquelle (Teil C) und dem UHV-Rezipienten für die Photoemissionsspektroskopie (Teil D). Das Femtosekundenlasersystem (Teil A) ist nicht mit dargestellt.

[1] Die Abkürzung SPIDER steht für *Spectral Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction* und beschreibt ein Messinstrument zur Charakterisierung ultrakurzer Pulse [110]. Hiermit ist die Messung der Pulsdauer und der spektralen Phase möglich.


A-1 Piezogesteuerter Einkoppelspiegel
B-1 Blende
B-2 Polarisator
B-3 Linse
B-4 Justierbarer Probenhalter und Magnet (Magnetfeld senkrecht zur Papierebene)
B-5 Prisma
B-6 Photomultiplier
B-7 Streulichtabschirmung
C-1 Fokussierlinse
C-2 Strahlblock
C-3 Referenzstrahlengang außerhalb des Vakuums
C-4 CCD-Kamera
C-5 Motorisierte Blende mit Skala (Laserblende)
C-6 Verfahrbares, gasgefülltes Röhrchen (HHG-Medium), rechts und links davon Vakuumtrennung
C-7 Motorisierte Blende (HHG-Blende)
C-8 HH-Meter
C-9 Blende im Ventil
C-10 HV-Ventil
C-11 Zr-Filter auf Lineardurchführung
C-12 Spalt, Fadenkreuz, Al-Filter
C-13 Reflexionsgitter
C-14 Detektor (MCP + Phosphorschirm)
C-15 Gradienten-Multilagenspiegel
Translation
- in Pfeilrichtung
- senkrecht zur Papierebene
Rotation
justierbarer Spiegelhalter
feststehender Spiegelhalter
D-1 Probenkarussell zur Aufnahme von 6 Probenhaltern
D-2 UHV-Ventil
D-3 Probenaufnahme Präparationskammer
D-4 Transferstange
D-5 Elektronenstrahlverdampfer
D-6 Ionenkanone
D-7 Mikroskop zur Betrachtung der Probenoberfläche
D-8 Probenscannertisch
D-9 Ellipsoidspiegel auf 6-Achsen-Tisch
nicht dargestellt: Spule oberhalb und unterhalb des Probenhalters in der Experimentierkammer zur Erzeugung eines gepulsten Magnetfeldes senkrecht zur Papierebene; weitere CCD-Kamera, die von oben auf den Wechselwirkungsbereich in der Experimentierkammer schaut.
B - SHG an Oberflächen
C - XUV-Laborquelle
D - Dichroismus-Experiment
A - Femtosekundenlasersystem
(nicht dargestellt)
Spektrometerkammer
Targetkammer
HHG-Kammer
Fokussierkammer
Druckstufe
Spiegelkammer
Experimentierkammer
Präparationskammer
Schleuse
TOF
200 mm

3.2 SHG an Oberflächen

Zusätzlich zu der Vakuumapparatur für die Photoemissionsspektroskopie wurde ein Aufbau zur Messung des nichtlinearen magneto-optischen Kerr-Effekts an Luft realisiert, um z.B. Hysteresekurven magnetischer Systeme bestimmen zu können. Fokussiert man den Femtosekundenpuls des 800 nm-Lasersystems auf eine Oberfläche, so wird dort durch die nichtlinearen Komponenten der Polarisation Licht der doppelten Frequenz erzeugt, dessen Intensität von der Ausrichtung der Magnetisierung abhängt.

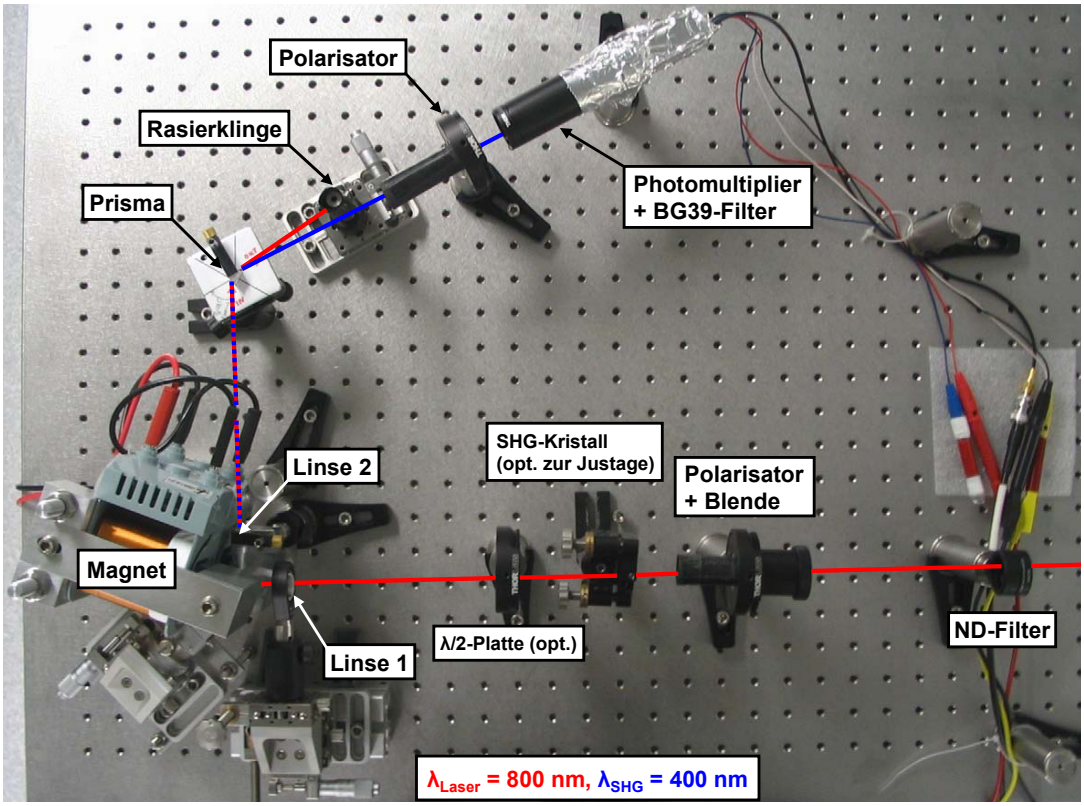


Abbildung 3.3: SHG-Aufbau

In Abbildung 3.3 ist die experimentelle Anordnung zur Messung dieser an der magnetisierten Probenoberfläche hervorgerufenen SH-Strahlung dargestellt. Da die Laserintensität einerseits nicht zur Zerstörung der Probe führen darf, andererseits das SH-Signal kurz vor der Zerstörschwelle des Materials am größten ist, muss der von rechts einlaufende Laserstrahl mit Hilfe von verschiedenen Graufiltern (ND-Filter für englisch *neutral density filter*) passend abgeschwächt werden. Für eine weitere Reduktion bzw. Anpassung der Intensität im Fokus spielen außerdem die Wahl der Brennweite der Linse 1 sowie die Pulsdauer, die mit Hilfe des Gitterkompressors und durch Einfügen von dispersivem Material in den Strahlengang verlängert werden kann, eine Rolle. Mit einer Brennweite der Linse von $f = 150\,\mathrm{mm}$ ergibt sich rechnerisch ein beugungsbegrenzter Fokus von etwa 25 µm bei einer Laserwellenlänge von 800 nm und einem durch die optischen Elemente begrenzten Strahl-

durchmesser von 5 mm. Ein Glan-Laser-Polarisator (Extinktionsverhältnis 200.000:1) sorgt für eine hinreichend gut definierte Eingangspolarisation, die optional mit der $\lambda/2$-Platte gedreht werden kann. Der nur zur Justage im Strahlengang platzierte SHG-Kristall (hier ein BBO-Kristall) liefert aufgrund seiner hohen Konversionseffizienz so viel blaues Licht, dass mit seiner Hilfe die optischen Komponenten bequem ausgerichtet werden können. Für die in dieser Arbeit gezeigten Messungen wurde eine transversale Geometrie gewählt, d.h. das durch zwei Spulen erzeugte Magnetfeld steht senkrecht zu der aus einlaufendem Laser- und auslaufendem SH-Strahl gebildeten Ebene. Die Abhängigkeit der magnetischen Flussdichte B vom Spulenstrom I ist nach Kalibrierung mit einer Hall-Sonde über die Gleichung $B = (0,64 \pm 0,30) + (31,78 \pm 0,12) \cdot I$ gegeben und variiert über die Probenfläche von $5 \times 6\, mm^2$ nur um ca. 1% des Wertes in der Probenmitte. Die generierte SH-Strahlung wird mittels einer zweiten Linse kollimiert und auf ein Prisma gelenkt, das als dispersives Element in Kombination mit einer scharfen Kante (hier eine Rasierklinge) eine Abtrennung der Fundamentalen ermöglicht. Mit einem zweiten Polarisator im Strahlengang des 400 nm-Lichtes kann eine Polarisationsanalyse durchgeführt werden, wodurch sich auch die magnetisierungsabhängigen, von der Oberfläche stammenden Anteile an blauem SH-Licht von der unpolarisierten Strahlung aus einem bei zu hoher Laserintensität z.B. an Luft erzeugten Plasma separieren lassen. Der Nachweis geschieht mit einem Photomultiplier (Modell *H6780* der Firma Hamamatsu), dessen Signalpuls auf einen ladungsintegrierenden Verstärker und eine Sample-and-hold-Elektronik gegeben wird, so dass das Integral über den durch einen Gate-Puls vorgegebenen Bereich um den Maximalwert des Verstärkersignals herum von einem PC aufgezeichnet werden kann. Bei einer synchronisierten Verstellung des Spulenstroms kann dann die Veränderung des SH-Signals in Abhängigkeit des äußeren Magnetfeldes bzw. der Magnetisierungsrichtung untersucht werden. Zur Streulichtabschirmung und Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses wurde ein innen geschwärzter Kasten um den Photomultiplier gebaut und mit nur einer kleinen Eintrittsöffnung versehen (in Abb. 3.3 nicht dargestellt). Da der Photomultiplier für den Nachweis einzelner Photonen geeignet ist, führen schon geringste Streulichtanteile insbesondere vom Pumplaser ($\lambda = 532$ nm), für die der BG39-Filter[2] fast vollständig transparent ist, zu einem deutlichen Hintergrundsignal.

[2]Der Glastyp BG39 weist für 400 nm eine Transmission von 79 % auf, ist aber für den Infrarotbereich mit einer Transmission bei 800 nm von $2 \cdot 10^{-3}$ % undurchlässig [111].

3.3 XUV-Laborquelle

3.3.1 Optische Elemente und Detektoren für den XUV-Spektralbereich

In diesem Kapitel werden zunächst die Besonderheiten der Wechselwirkung der XUV-Strahlung mit Materie vorgestellt und dann die sich daraus ergebenden Konsequenzen für die Auswahl der Beamline-Komponenten zur Strahlführung, Charakterisierung und Fokussierung der Harmonischenstrahlung erläutert.

XUV-Reflexion

Im XUV-Spektralbereich ist der Brechungsindex n in etwa gleich eins, so dass er üblicherweise in der Form $n(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega)$ mit $\delta \ll 1$ und $\beta \ll 1$ geschrieben wird. Daher kann man nicht wie bei sichtbarem oder infrarotem Licht Linsen oder vergleichbare, auf der Lichtbrechung basierende optische Elemente verwenden. Bei der Untersuchung der Streuung der Strahlung an Materie ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen den Korrekturen zum Brechungsindex des Vakuums δ und β und dem atomaren Streufaktor[3] $f = f_1 + if_2$ (siehe z.B. [2]; die Streufaktoren sind tabelliert in [112]):

$$\begin{aligned} \delta &= \frac{N_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1 \\ \beta &= \frac{N_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2 \,. \end{aligned} \tag{3.1}$$

In Analogie zu Kapitel 2.3.3 wird die Atomdichte mit N_a und der klassische Elektronenradius mit r_e bezeichnet. Während der erste Term für eine Phasenverschiebung $\Delta\varphi = 2\pi\delta\Delta z/\lambda$ bei der Propagation der Lichtwelle im Medium verantwortlich ist, beschreibt der zweite Term β die Absorption, die für dünne Filme dem *Lambert-Beer-Gesetz*

$$I = I_0 \exp\left(-\frac{4\pi\beta}{\lambda}\Delta z\right) \tag{3.2}$$

mit der Ausgangsintensität der einfallenden Strahlung I_0 und der Intensität I nach der im Material zurückgelegten Strecke Δz gehorcht. Die Absorptionslänge, nach der die Intensität auf $1/e$ abgefallen ist, ergibt sich damit zu $l_{\text{abs}} = \lambda/(4\pi\beta)$. Weil die Phasengeschwindigkeit im Material leicht höher ist als im Vakuum ($\Rightarrow n < 1$), wird die unter dem Winkel ϕ zur Oberflächennormalen einfallende Strahlung gemäß dem *Snelliusschen Brechungsgesetz* $\sin\phi = n \sin\phi_b$ bzw. $\sin\phi = (1-\delta)\sin\phi_b$ bei Vernachlässigung der Absorption unter dem Brechungswinkel ϕ_b vom Lot weggebrochen. Für die Bedingung $\phi_b = \pi/2$, die für den Einfallswinkel[4] $\phi_c = 90° - \theta_c$ erfüllt sei, ergibt sich analog zu der Totalreflexion in

[3] Der atomare Streufaktor beschreibt das Verhältnis der von einem Atom gestreuten Amplitude des elektrischen Feldes zu der von einem einzelnen, freien Elektron.

[4] Bei der Behandlung von XUV- bzw. Röntgenstrahlung ist es üblich, den Winkel zwischen der Oberfläche und der Propagationsrichtung $\vec{k}$ der einlaufenden Welle anzugeben (und nicht den Einfallswinkel gemessen zur Oberflächennormalen).

einem Medium für sichtbares Licht eine totale äußere Reflexion an einer Oberfläche für XUV-Strahlung. Dieser kritische Winkel θ_c ist aufgrund von $\delta \ll 1$ ebenfalls klein, so dass die Näherung $\cos\theta_c \approx 1 - \theta_c^2/2$ gerechtfertigt ist. Durch Einsetzen von Gleichung 3.1 zeigt sich folgende Abhängigkeit von dem Realteil des atomaren Streufaktors f_1, der in erster Näherung proportional zu der Ordnungszahl Z der Elemente ist:

$$\theta_c \approx \sqrt{2\delta} = \sqrt{\frac{N_a r_e \lambda^2 f_1}{\pi}} \propto \lambda\sqrt{Z}\,. \tag{3.3}$$

Für den realen Fall von $\beta \neq 0$ gibt es Absorptionsverluste im Material, da die Welle eine von Null verschiedene Eindringtiefe z_e besitzt:

$$\begin{aligned} z_{e,0} &\approx \frac{\pi\lambda\sqrt{\delta}}{2\sqrt{2}} \quad \text{für } \theta \ll \theta_c\,, \\ z_{e,c} &\approx \frac{\lambda}{2\pi\sqrt{\beta}} \quad \text{für } \theta = \theta_c\,. \end{aligned} \tag{3.4}$$

In Tabelle 3.1 sind die Werte der oben genannten Größen für die in der Beamline eingesetzten Materialien nahe der für die Photoemissionsspektroskopie verwendeten Anregungsenergie zusammengestellt.

	f_1	f_2	δ	β	l_{abs} [nm]	θ_c [°]	$z_{e,0}$ [nm]	$z_{e,c}$ [nm]
Al	-0,57	5,99	-0,0028	0,0297	36,3	-	-	12,5
Au	19,99	11,19	0,0971	0,0544	19,8	25,25	4,7	9,3
Zr	12,11	1,06	0,0429	0,0038	287,4	16,77	3,1	35,2
Mo	14,96	1,47	0,0789	0,0078	139,1	22,76	4,2	24,5
Si	0,7	0,43	0,0029	0,0018	609,6	4,35	0,8	51,3

Tabelle 3.1: Werte für f_1 und f_2 bei der Energie der Si $L_{2,3}$-Emissionslinie von $91,5\,\text{eV}$ aus [112]. Die übrigen Werte sind mit den im Text genannten Formeln berechnet. Wegen $\delta < 0$ bei Aluminium sind dort keine Werte für den kritischen Winkel und die Eindringtiefe $z_{e,0}$ angegeben.

Bezeichnet man mit E_0 die Amplitude des elektrischen Feldes der einlaufenden Welle und mit E_{ref} die der reflektierten, so gilt für die Reflektivität R_p einer Oberfläche im Fall von p-polarisiertem Licht:

$$R_p = \left|\frac{E_{\text{ref}}}{E_0}\right|^2 = \frac{\left|n^2\cos\phi - \sqrt{n^2 - \sin^2\phi}\right|^2}{\left|n^2\cos\phi + \sqrt{n^2 - \sin^2\phi}\right|^2}\,. \tag{3.5}$$

Für den senkrechten Einfall ($\phi = 0$) reduziert sich die Gleichung zu

$$R_p = \frac{(n-1)(n^*-1)}{(n+1)(n^*+1)} \approx \frac{\delta^2 + \beta^2}{4}\,. \tag{3.6}$$

Nach den obigen Überlegungen müssen auf Reflexion basierende optische Elemente im streifenden Einfall (möglichst $\theta \ll \theta_c$) betrieben werden. Zur Fokussierung der Strahlung sind gekrümmte Oberflächen notwendig, wobei durch den streifenden Einfall bei

den üblicherweise im sichtbaren Spektralbereich verwendeten sphärischen Spiegeln starke Abbildungsfehler auftreten (insbesondere Astigmatismus). Kirkpatrick und Baez haben deshalb als erste die Verwendung ellipsen- und parabelförmiger Spiegel oder ein System aus zwei senkrecht zueinander stehenden Reflektoren zur Reduktion der Abbildungsfehler vorgeschlagen [113]. Da das Quellvolumen der Harmonischenstrahlung verkleinert auf die zu untersuchende Probe abgebildet werden soll, um eine möglichst hohe Ortsauflösung zu realisieren, wird im Rahmen dieser Arbeit ein *Ellipsoidspiegel* als fokussierendes Element verwendet. Er realisiert eine Abbildung vom einen Brennpunkt in den anderen, wobei sich die Vergrößerung aus dem Verhältnis der beiden Brennweiten ergibt. Neben der Formgenauigkeit der Optik spielt im XUV-Bereich aufgrund der kleinen Wellenlängen die Oberflächenbeschaffenheit eine große Rolle, da die reflektierte Intensität bei einer mittleren Rauigkeit σ um den Faktor $\exp[-(4\pi\sigma\sin\theta/\lambda)^2]$ gegenüber einer ideal glatten Oberfläche reduziert wird [114] und deshalb $\sigma < \lambda$ sein sollte.

Multilagenspiegel

Die zweite wichtige Klasse von optischen Elementen bilden die diffraktiven Optiken, die auf der konstruktiven Interferenz der reflektierten Teilwellen basieren. In der Spektrometerkammer kommen zum einen ein *Multilagenspiegel* als Umlenkspiegel und Bandpassfilter sowie zum anderen ein *Reflexionsgitter* als dispersives Element zur spektralen Charakterisierung der Harmonischenstrahlung zum Einsatz. Ein Multilagenspiegel besteht gemäß Abbildung 3.4a aus einer periodischen Abfolge eines Materials hoher Streustärke $N_a \cdot f(\omega)$, wofür man im Allgemeinen ein Material hoher Ordnungszahl Z wie z.B. Molybdän auswählt (Absorber), sowie einer Zwischenschicht eines Materials mit niedriger Brechkraft und möglichst geringer Absorption (Spacer). Als Spacer-Material bietet sich z.B. Silizium mit seiner großen Absorptionslänge und kleinen Werten von δ und β an. Die Impuls- und Energieerhaltung beim Streuprozess an einer periodischen Struktur der Gesamtdicke $d = d_1 + d_2$ führt zu der für die Multilagenstruktur modifizierten *Bragg-Bedingung*

$$m\lambda = 2d\,\sin\theta\sqrt{1-\frac{2\delta_{\text{eff}}}{\sin^2\theta}} \quad \text{mit } \delta_{\text{eff}} = \frac{d_1\delta_1 + d_2\delta_2}{d_1 + d_2} \tag{3.7}$$

mit der Beugungsordnung $m \in \mathbb{N}$. Neben den Streustärken der beiden Materialien und der Periodenzahl N, die die reflektierte Bandbreite des Spiegels bestimmt, ist das Verhältnis von der Schichtdicke des Materials hoher Ordnungszahl d_2 zu der Gesamtdicke einer Periode $\Gamma = d_2/(d_1 + d_2)$ ein weiterer wichtiger Parameter bei der Herstellung der Multilagenspiegel. Nach Ref. [115] ergibt sich für eine sinusförmige Variation der Streustärke und bei senkrechtem Einfall der optimale Wert für Γ gemäß der Beziehung

$$\tan(\pi\Gamma_{\text{opt}}) = \pi\left[\Gamma_{\text{opt}} + \frac{\beta_1}{\beta_2 - \beta_1}\right]. \tag{3.8}$$

Eine genauere Behandlung von Multilagenspiegeln findet sich z.B. in Ref. [116].

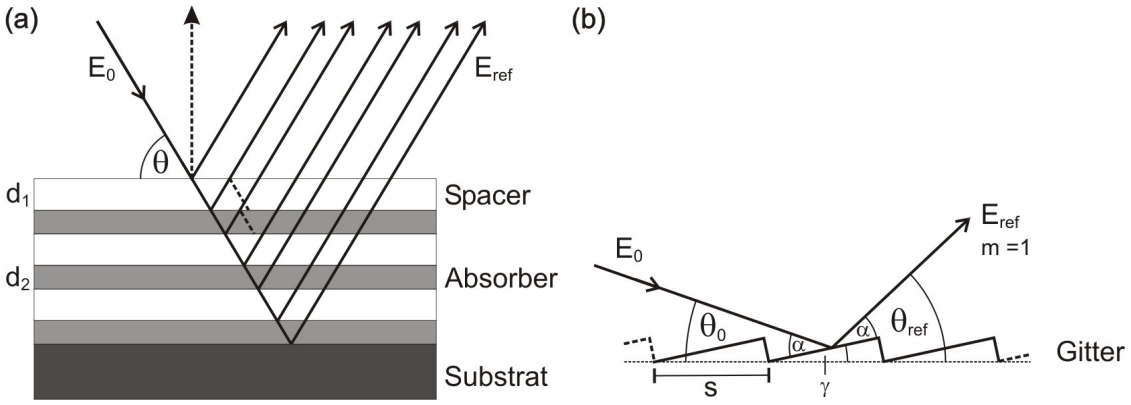


Abbildung 3.4: (a) Aufbau einer Multilagenspiegelbeschichtung und Strahlengänge der davon reflektierten Teilwellen (Mehrfachreflexionen nicht gezeigt). (b) Reflexion am Gitter (s Gitterperiode, γ Blaze-Winkel).

Reflexionsgitter

Für ein planes Gitter als eine räumlich strukturierte, periodische Abfolge von reflektierenden Flächen gilt die folgende Bedingung für die konstruktive Interferenz der davon ausgehenden Teilwellen:

$$m\lambda = s\,(\cos\theta_0 - \cos\theta_{\text{ref}})\,. \tag{3.9}$$

In Abbildung 3.4b ist schematisch die Oberfläche eines Gitters gezeigt, bei dem die reflektierenden Gitterzonen um den Winkel γ gekippt sind (sogenanntes *Blaze-Gitter*). Dieser Gittertyp wird auch im HH-Spektrometer als dispersives Element verwendet. Das Bild zeigt die Anordnung für die Erzielung einer maximalen Gittereffizienz in der ersten Beugungsordnung $m = 1$, die sich durch entsprechende Wahl des Einfalls- und Blaze-Winkels in Reflexionsrichtung α bezüglich der Gitterfacetten befindet. Nach Ref. [117] lässt sich eine empirische Formel für diese maximale Effizienz E in Abhängigkeit von der Reflektivität R einer planen Fläche (ergibt sich z.B. aus Gleichung 3.5) und dem Ein- bzw. Ausfallswinkel finden:

$$E = R(\alpha)\,\cdot\,\kappa \quad \text{mit } \kappa = \text{Infimum}\left(\frac{\sin\theta_0}{\sin\theta_{\text{ref}}}, \frac{\sin\theta_{\text{ref}}}{\sin\theta_0}\right)\,. \tag{3.10}$$

Ein weiteres Charakteristikum für ein Gitter ist dessen Auflösungsvermögen A, das durch die Gleichung

$$A \equiv \frac{\lambda}{|\Delta\lambda|} = N\,m = \frac{B}{\lambda}(\cos\theta_0 - \cos\theta_{\text{ref}}) \tag{3.11}$$

mit der Anzahl der Gitterfacetten N, die über $N = B/s$ von der Breite B der ausgeleuchteten Gitterfläche abhängt, gegeben ist. Nach Differenzieren von Gleichung 3.9 erhält man die Winkeldispersion

$$\frac{d\theta_{\text{ref}}}{d\lambda} = \frac{m}{s\sin\theta_{\text{ref}}}\,. \tag{3.12}$$

Erwähnt werden soll als diffraktive Optik für den hier betrachteten Spektralbereich ebenfalls die *Zonenplatte*, die z.B. in Ref. [2] und [114] beschrieben ist, im Rahmen dieser Arbeit aber nicht eingesetzt wurde.

Detektion der XUV-Strahlung

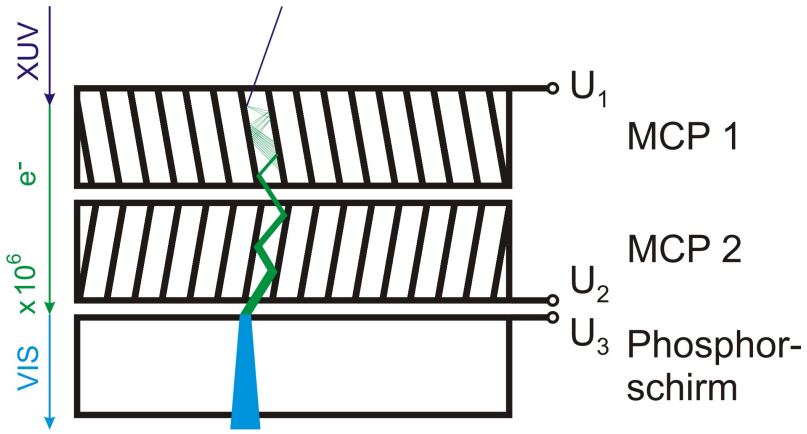


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung eines MCP-Phosphorschirm-Detektors zum Nachweis der XUV-Strahlung.

Um die XUV-Strahlung zu detektieren, wird sie z.B. in sichtbares Licht umgewandelt, das mit einer herkömmlichen CCD-Kamera aufgenommen werden kann. Die Konversion in den sichtbaren Spektralbereich geschieht mit *Phosphorbeschichtungen*[5], die nach Anregung mit XUV-Licht oder Elektronen Fluoreszenzstrahlung aussenden. Je nach Intensität der Strahlung kann diese direkt durch eine Phosphorbeschichtung des CCD-Chips der Kamera nachgewiesen werden (diese Methode wurde bei der Vermessung des Fokus angewendet); sie muss aber aufgrund der geringen Erzeugungseffizienz beim HHG-Prozess im Allgemeinen verstärkt werden. Eine Verstärkung erreicht man mit einer *Multichannelplate* (abgekürzt MCP, [119]), die aus einer Matrix nebeneinanderliegender, 10 bis 100 µm dünner und schräg zur Oberfläche verlaufender Kanäle aus halbleitendem Bleiglas besteht. Zwischen die auf die Vorder- und Rückseite aufgedampfte Metallbeschichtung einer MCP wird eine Spannung von bis zu 1 kV angelegt ($\Rightarrow U_1 \geq -2000\,\mathrm{V}$ bei $U_2 = 0\,\mathrm{V}$ in Abb. 3.5), so dass die durch die ionisierende XUV-Strahlung erzeugten Elektronen zur MCP-Rückseite hin beschleunigt werden und beim Auftreffen auf die Kanalwand Sekundärelektronen auslösen. Durch fortgesetzte Stöße mit der Kanalwand erhält man eine exponentiell ansteigende Anzahl dieser Sekundärelektronen. Im Fall von zwei hintereinanderliegenden MCPs (sogenannte *Chevron-Anordnung*) wird ein Verstärkungsfaktor von etwa $3 \cdot 10^4$ bis $9 \cdot 10^6$ je nach angelegter Spannung erreicht [120]. Zusammen mit einem dahinterliegenden Phosphorschirm auf stark positiver Spannung ($U_3 = 3000\,\mathrm{V}$) bildet diese Anordnung einen zweidimensionalen, ortsauflösenden Detektor, der im HHG-Spektrometer sowie als Strahllagemonitor in der Experimentierkammer zum Einsatz kommt (Modell *APD 2 PS 25/12/10/12 D 40:1 P43* der Firma Photonis). Ersetzt man den Phosphorschirm mit der Fluoreszenzlebensdauer für P43 von ca. 1 ms durch eine Metallanode, so

[5] In dieser Arbeit wurde der Phosphor P43 (chemische Zusammensetzung $Gd_2O_2S{:}Tb$) mit einem Emissionsmaximum bei 545 nm und einer Effizienz von 185 Photonen pro 6 keV-Elektron verwendet [118].

erhält man bei Verlust der Ortsauflösung einen für hohe Zeitauflösung optimierten Detektor, der durch die Antwortzeit der MCP im Bereich einiger 100 ps begrenzt ist und im Flugzeitspektrometer für die Photoemissionsspektroskopie zum Einsatz kommt. Eine weitere Möglichkeit zur Detektion der XUV-Strahlung stellen spezielle Kameras mit rückseitig belichteten, gedünnten CCD-Chips dar [121]. Zeitweise stand zu Justagezwecken und für die Abschätzung des Photonenflusses das Kameramodell PIXIS-XO der Firma Princeton Instruments zur Verfügung [122].

3.3.2 Harmonischenerzeugung und Beamline

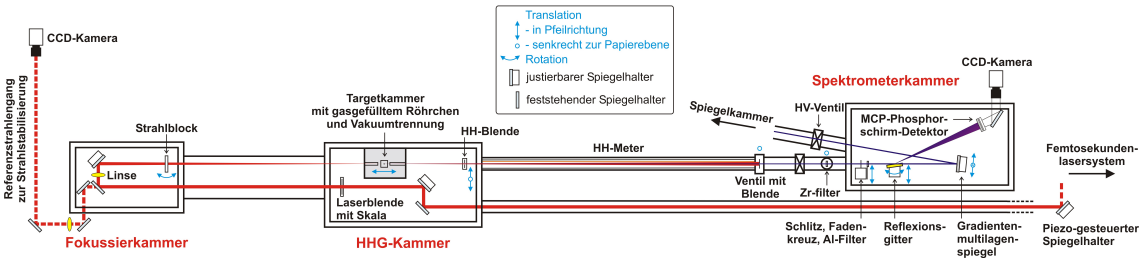


Abbildung 3.6: Schematischer Aufbau der HHG-Beamline.

Zur Erzeugung der Harmonischenstrahlung wird das Laserlicht des Femtosekundenlasersystems mit Hilfe einer Fokussierlinse (plan-konvex, $f = 1\,\mathrm{m}$) in ein dünnwandiges, gasgefülltes Nickelröhrchen mit einem Durchmesser von 3 mm in der Targetkammer fokussiert. Dabei werden die zur Vakuumtrennung dienenden Aluminiumfolien rechts und links des Röhrchens sowie die Röhrchenwand durch die hohe Intensität lokal durchtrennt, so dass hierdurch automatisch die optimal kleinen Öffnungen für den fokussierten Strahl entstehen. Um ein Aufbohren dieser Öffnungen durch Drifts des Laserstrahls zu verhindern, wird die im Referenzstrahlengang außerhalb des Vakuums gemessene Strahlposition mit Hilfe eines Piezo-gesteuerten Spiegelhalters der Firma Thorlabs konstant gehalten [123]. Aufgrund der Fokussierung werden dadurch Winkeländerungen ausgeglichen (siehe Kapitel 4.1). Da für die Strahlstabilisierung der durch den Umlenkspiegel transmittierte Anteil des Laserlichts verwendet wird, ist die Betrachtung von Positionsänderung und Aussehen des Laserfokus im Referenzstrahlengang, der in etwa auch dem Originalfokus zur Harmonischenerzeugung entspricht, parasitär zu den Photoemissionsexperimenten möglich. Für die Justage des Laserstrahls ohne Beschädigung des Targetröhrchens muss der an einer Drehdurchführung montierte Strahlblock in den Strahlweg geklappt oder die aus dem Verstärker ausgekoppelte Leistung herabgesetzt werden. Zur Kontrolle der Laserintensität im Fokus kann der Strahlengang durch eine Apertur (Laserblende mit kalibrierter Skala zur Ablesung des Durchmessers) eingeschränkt werden, wodurch einerseits die Pulsenergie verringert und andererseits die Fokusfläche vergrößert wird.

Ein spezielles Problem beim Transport der Harmonischenstrahlung ist die kollinear

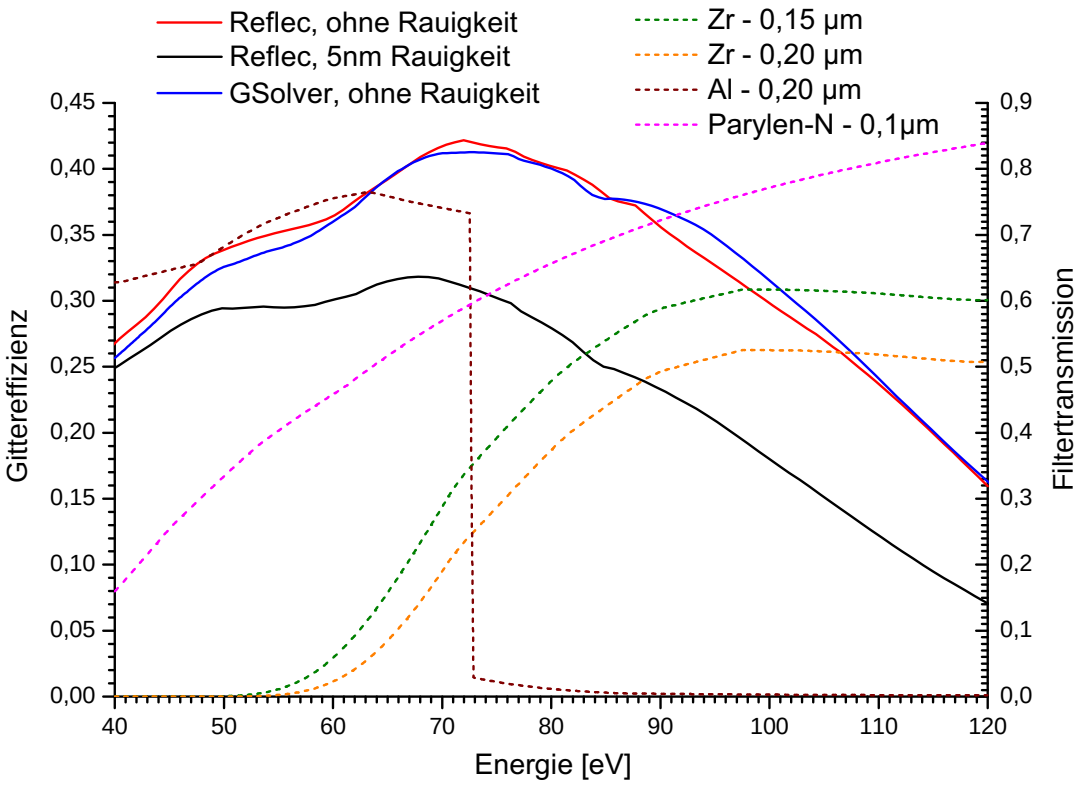


Abbildung 3.7: Effizienz des Spektrometergitters (durchgezogene Linien und linke y-Achse, [124, 125]) und Transmission der verwendeten Filter (gestrichelte Linien und rechte y-Achse, [126]) in Abhängigkeit der Photonenenergie.

mit der XUV-Strahlung propagierende und mehrere Größenordnungen stärkere Fundamentale, die die nachfolgenden Beamline-Komponenten beschädigen kann. Deren Unterdrückung kann durch im Infrarot- und sichtbaren Bereich opake Metallfolien mit ausreichender Transparenz für die gewünschten XUV-Wellenlängen erreicht werden. Aufgrund der Absorption der XUV-Strahlung sind diese Folien wenige hundert Nanometer dünn. Als Materialien werden hier eine reine Zirkonium-Folie mit der bei 90 eV vergleichsweise großen Absorptionslänge oder Zirkonium mit einer Parylen-Unterlage zur Stabilisierung und Glättung der Oberfläche verwendet (siehe Abb. 3.7 für die zugehörigen Transmissionskurven). Der ebenfalls benutzte Aluminiumfilter dient wegen der Lage der Absorptionskante bei 72,7 eV (und damit zwischen der 45. und 47. Harmonischen der 800 nm-Laserwellenlänge) zur Kalibrierung des Spektrometers. Nach dem Targetröhrchen sind zwei weitere Blenden eingebaut, die die äußeren Bereiche des im Vergleich zur Harmonischenstrahlung divergenteren Laserlichts abschneiden und so die Laserintensität auf dem fragilen Zr-Filter verringern, der aus dem gleichen Grund in einem Winkel von 45° gegenüber der Strahlachse geneigt ist. Die erste Blende (HH-Blende) ist in der Ebene senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung verfahrbar, damit sie auf den Strahl zentriert werden und als weitere Referenz für die Strahllage dienen kann. Zwischen den beiden letztgenannten Blenden befindet sich das *„HH-Meter“*, eine ähnlich einem Geiger-Müller-Zählrohr aufge-

baute Nachweiseinrichtung für ionisierende Strahlung [127]. Es besteht aus einem ca. 1, 4 m langen, vom Vakuumsystem isolierten Metallrohr sowie aus einem im Rohrinneren neben der Strahlachse ebenfalls isoliert angebrachten Draht. An das Rohr wird nun eine positive Spannung von 7, 2 V angelegt, so dass die durch die XUV-Strahlung erzeugten Restgasionen (das Restgas besteht im Wesentlichen aus dem Targetgas Neon) von dem Draht aufgefangen werden. Der so entstandene Ionenstrom wird über einen Verstärker mit einem Verstärkungsfaktor von 1 V/nA auf den Eingang eines Oszilloskops gegeben. Die am Oszilloskop angezeigte Spannung ist proportional zu dem mittleren Ionenstrom und damit zu der Anzahl der emittierten Harmonischenphotonen mit Energien oberhalb des Ionisationspotentials der Restgasatome. Das HH-Meter ermöglicht eine nicht invasive Kontrolle der Justage und Stabilität der XUV-Quelle.

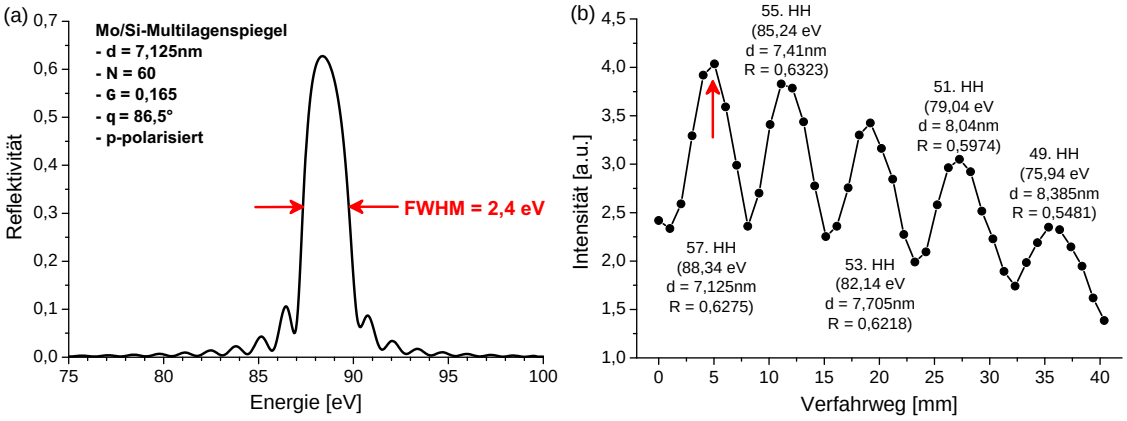


Abbildung 3.8: (a) Theoretische Reflektivität des Multilagenspiegels bei der für die 57. Harmonische optimalen Periodendicke (berechnet mit [126] unter der Annahme, dass die Dicke der Interdiffusionsschicht gleich Null ist). (b) Am Ende der Beamline gemessene Harmonischenintensität in Abhängigkeit des Verfahrwegs des Multilagenspiegels senkrecht zur optischen Achse. Die Angaben beziehen sich auf eine Zentralwellenlänge von 800 nm und geben die optimale Periodendicke d sowie die theoretische Reflektivität R an. Der rote Pfeil markiert eine Messposition des Spiegels für die Photoemissionsspektroskopie.

In der Spektrometerkammer können das Strahlprofil und das emittierte Spektrum untersucht werden. Für die Betrachtung des Strahlprofils wird zunächst das Reflexionsgitter[6] in den Strahlengang gefahren, das XUV-Licht in dessen nullter Beugungsordnung auf den MCP-Phosphorschirm-Detektor reflektiert und die dort entstehenden Fluoreszenzphotonen mit der CCD-Kamera aufgenommen. Zur spektralen Charakterisierung wird zusätzlich ein 100 µm breiter Spalt hereingefahren, so dass das reflektierte Licht in der ersten Beugungsordnung des Gitters spektral aufgespalten in Form von vertikalen Linien auf dem Detektor sichtbar ist. Durch die geeignete Wahl der Spaltbreite, Detektorgröße und des Abstands zum Gitter wird erreicht, dass gleichzeitig die nullte Ordnung und die vom Zr-Filter

[6]Reflexionsgitter der Firma Newport mit folgenden Parametern: 600 Linien/mm, Blaze-Winkel $\gamma = 2°$, Goldbeschichtung. Der Einfallswinkel θ_0 beträgt 8° für die erste Beugungsordnung; bzgl. der Effizienz siehe Abb. 3.7.

transmittierten Harmonischenwellenlängen bis zum Cut-off in der ersten Beugungsordnung spektral aufgelöst auf dem Kamerabild sichtbar sind. Auf der Spalthalterung befinden sich zu Justagezwecken ein Fadenkreuz sowie ein vor den Spalt schiebbarer Aluminiumfilter, mit dessen Absorptionskante das Spektrometer kalibriert werden kann.

Sind in der Spektrometerkammer sowohl Spalt als auch Gitter aus dem Strahlengang herausgefahren, trifft die XUV-Strahlung auf den Gradienten-Multilagenspiegel der Firma AXO Dresden und wird von dort aus in Richtung der Spiegelkammer umgelenkt. Dessen Periodendicke variiert laut Hersteller mit einem Gradienten von $0,04\,\mathrm{nm/mm}$ von $6,69\,\mathrm{nm}$ bis $8,69\,\mathrm{nm}$ senkrecht zur optischen Achse, so dass durch Verfahren des Spiegels das Transmissionsmaximum verschoben werden kann. Die Parameter $\Gamma = 0,15 \ldots 0,18$ und $N = 60$ garantieren einen schmalbandigen Transmissionsverlauf bei einer theoretischen maximalen Reflektivität von etwa $60\,\%$ (siehe Abb. 3.8a), so dass eine einzelne Harmonische aus dem erzeugten Spektrum selektiert werden kann. Die Messung der Harmonischenintensität in Abhängigkeit des Verfahrwegs des Multilagenspiegels in vertikaler Richtung (Abb. 3.8b) bestätigt nach Zuordnung der Maxima zu einer Photonenenergie und einer dafür optimalen Periodendicke den vom Hersteller angegebenen Wert für den Schichtdickegradienten. Die HHG-Kammer samt Targetkammer und Gaseinlass sowie die Spektrometerkammer mit dem XUV-Spektrometer wurden im Rahmen zweier Diplomarbeiten konzipiert und aufgebaut [124, 128].

3.4 Dichroismus-Experiment

3.4.1 Gestell und Vakuumsystem

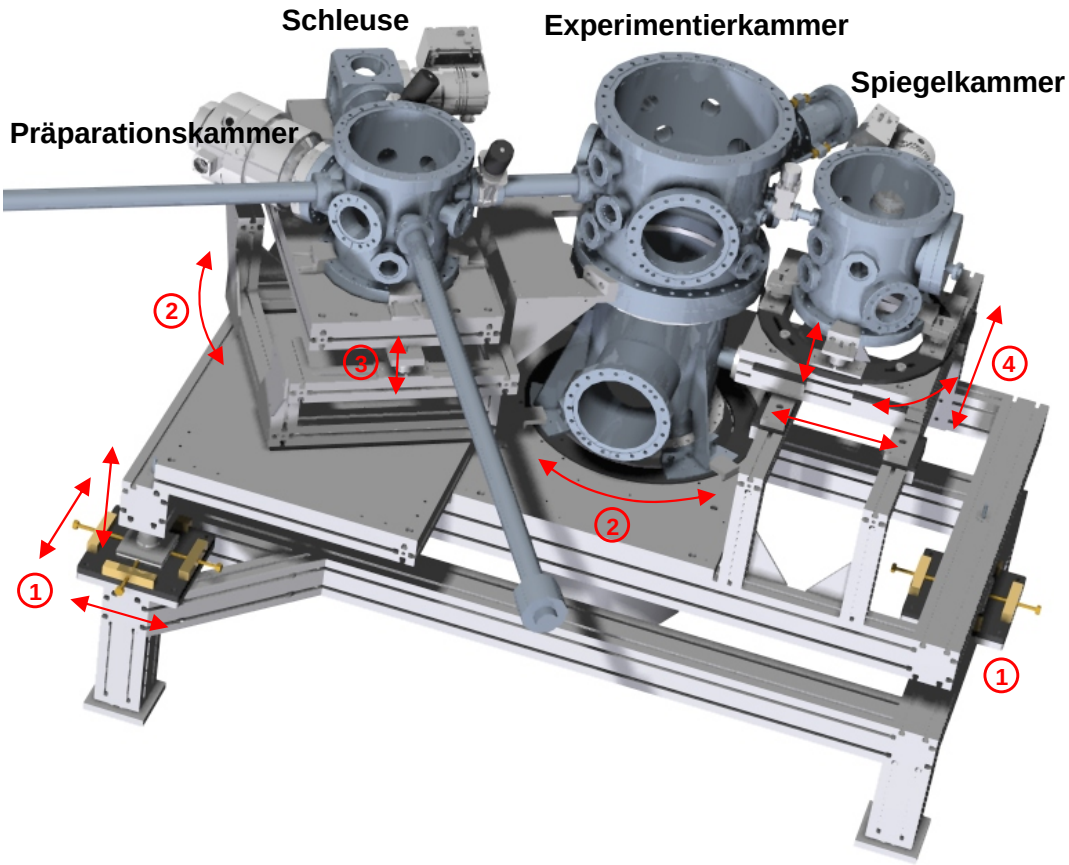


Abbildung 3.9: 3D-Konstruktionsansicht der Vakuumkammern auf dem Gestell. Die Justiermöglichkeiten des Aufbaus sind mit roten Pfeilen und Zahlen gekennzeichnet.

Der experimentelle Aufbau setzt sich aus vier Vakuumkammern zusammen: Schleuse, Präparations-, Experimentier- und Spiegelkammer. Deren Aufhängung besteht aus einem Untergestell (Aluminiumprofile der Firma MiniTec), auf dem ein Rahmen auf drei höhen- und seitenverstellbaren Füßen (Abb. 3.9, 1) aufgesetzt ist, so dass Unebenheiten des Bodens ausgeglichen und die Kammern als gesamte Einheit auf die HHG-Beamline ausgerichtet werden können. Die zylinderförmige Spiegelkammer lässt sich separat durch Drehung um ihre Mittelachse, Verschiebung entlang zweier Richtungen und eine Höhenverstellung auf die Experimentierkammer bzw. den Harmonischenstrahl ausrichten (4). Die Experimentierkammer kann zusammen mit dem starr daran angekoppelten Untergestell für die Präparationskammer und die Schleuse ebenfalls um ihre Mittelachse rotiert werden (2), was bei feststehender Spiegelkammer unterschiedliche Einfallswinkel (in 15°-Schritten von 0° bis 45° gemessen zur Probenoberfläche) der XUV-Strahlung erlaubt. Die Schleuse und die Präparationskammer sind zusammen auf einem dritten Rahmen befestigt, der sich hinsichtlich der Höhe und Kippung an die Experimentierkammer angleichen lässt (3). Für

eine Aufsicht auf die Kammern siehe die schematische Darstellung des Gesamtaufbaus auf Seite 38 (Teil D).

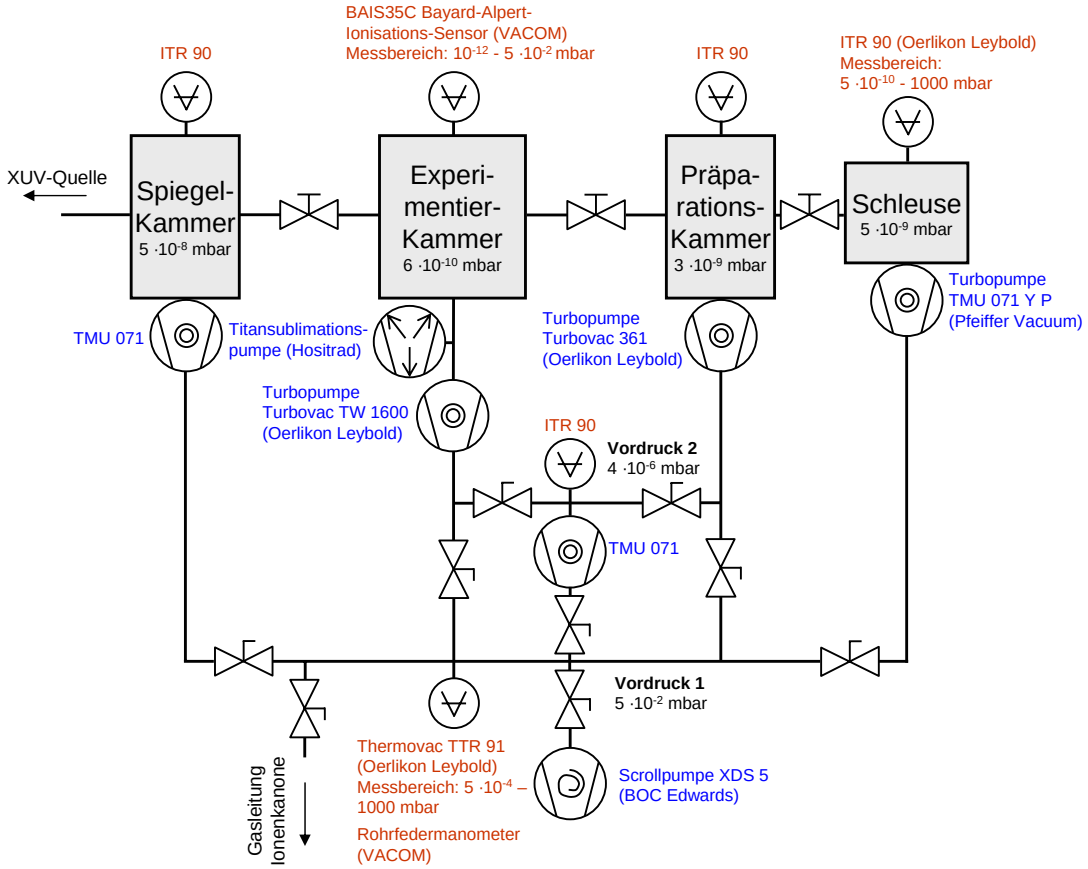


Abbildung 3.10: Schematischer Aufbau des UHV-Systems.

Die vier Vakuumkammern sind jeweils mit eigenen Pumpen, Druckmessgeräten und Belüftungsventilen versehen, so dass sie durch ein geeignetes Ventilsystem getrennt evakuiert und belüftet werden können, ohne das Vakuum der anderen Kammern brechen zu müssen (siehe Abb. 3.10). Die Turbopumpen der Experimentier- und Präparationskammer sind im Gegensatz zur Schleuse und Spiegelkammer an einen zweiten Vorvakuumkreis angeschlossen, um dadurch einen niedrigeren Enddruck zu erreichen. Während der erste Vorvakuumkreis von einer ölfreien Scrollpumpe abgepumpt wird, erzeugt eine weitere Turbopumpe im zweiten Kreis einen Vorvakuumdruck im Bereich von 10^{-6} mbar. In den magnetfeldsensitiven Bereichen kommen Turbopumpen ohne Magnetlager der Firma Oerlikon Leybold und ansonsten Pumpen der Firma Pfeiffer Vacuum zum Einsatz. In Abbildung 3.10 sind die Basisdrücke der Kammern angegeben. Bei der Aufnahme der Xenon-Spektren herrschte in der Experimentierkammer ein Druck von etwa $5 \cdot 10^{-6}$ mbar und bei den Messungen an den Festkörperoberflächen von $1\text{–}5 \cdot 10^{-9}$ mbar, wobei der Druckanstieg nach Öffnen des Ventils zur HHG-Beamline bei den letztgenannten Experimenten im Wesentlichen aus dem hohen Neon-Gasdruck im Targetbereich zur Harmonischenerzeugung resultierte. Einen Beitrag lieferten aber auch die Schrittmotoren beim Verfahren

des Probenscannertisches. Während des Sputterns wurde in der Präparationskammer ein Argon-Partialdruck von $5 \cdot 10^{-6}$ mbar eingestellt, der beim anschließenden Aufdampfen der Eisenschichten wieder um mehr als zwei Größenordnungen absank. Da von dem Targetröhrchen mit Gasdrücken um die 100 mbar bis hin zum UHV-Bereich in der Experimentierkammer etwa 11 Größenordnungen überbrückt werden müssen, ist zwischen Spiegel- und Spektrometerkammer zusätzlich eine Druckstufe eingebaut.

3.4.2 Spiegelkammer

Die vom Gradienten-Multilagenspiegel reflektierte XUV-Strahlung trifft in der Spiegelkammer unter einem Winkel von 7,5° gemessen zur Oberfläche auf den Ellipsoidspiegel (∅ 40 mm, Firma Kugler), der diese auf die Probenoberfläche fokussiert. Die Brennweiten betragen in Richtung der XUV-Quelle 6 m und in Richtung der Probe 0, 4 m, woraus sich geometrisch eine Verkleinerung der abgebildeten Quellgröße um den Faktor 15 ergibt. Der Spiegel wurde nachträglich mit einer etwa 50 nm dicken Goldschicht bedampft [129], da dieses sehr korrosionsbeständige Material aufgrund seiner hohen Ordnungszahl $Z = 79$ einen großen kritischen Winkel und eine kleine Eindringtiefe aufweist. Abbildung 3.11 zeigt die Reflektivität der Goldschicht in Abhängigkeit von dem Einfallswinkel und der Photonenenergie. Eine Verkleinerung des Einfallswinkels führt zwar zu einer Erhöhung der Reflektivität, setzt bei gleichbleibendem Akzeptanzwinkel jedoch den Einsatz immer größerer und damit schwieriger herzustellender XUV-Optiken voraus, so dass die hier gewählte Anordnung einen Kompromiss aus guter Reflektivität und Qualität der Optik bei einem zu der Divergenz der Harmonischenstrahlung passenden Akzeptanzbereich des Spiegels von etwa 1 mrad darstellt.

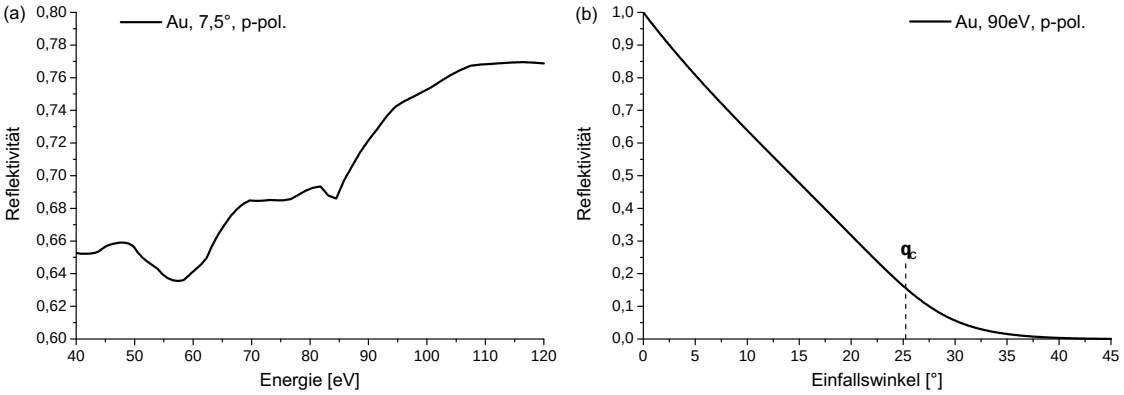


Abbildung 3.11: Reflektivität einer ideal glatten ($\sigma = 0$), goldbeschichteten Spiegeloberfläche in Abhängigkeit von der Photonenenergie bei festem Einfallswinkel von 7,5° (a) und in Abhängigkeit des Einfallswinkels der Strahlung bei fester Photonenenergie von 90 eV(b). Die auf den Spiegel treffende Strahlung ist jeweils p-polarisiert. Berechnet mit [126].

Der Ellipsoidspiegel ist zur Justage auf einem 6-Achsen-Tisch mit drei motorisierten Translationsachsen zur Zentrierung auf die Propagationsrichtung des HH-Lichts und 2

ebenfalls motorisierten Kippachsen zur Einstellung des Reflexionswinkels befestigt (siehe Abb. 3.12). Zusätzlich ist er um die Rotationsachse senkrecht zur Spiegeloberfläche (Winkel δ) manuell drehbar, und der Reflexionswinkel kann durch Drehung der Grundplatte per Hand voreingestellt werden. Der Antrieb der Lineartische (Modell NFO-9062-XYZ der Firma New Focus) geschieht mit einem über einen Zahnriemen und zwei Zahnräder an eine Feingewindeschraube angekoppelten Schrittmotor (AM1524 der Firma Faulhaber); die Gewindespindel zur Verkippung des Goniometers (Large Goniometer Head 1003 der Firma Huber) ist über einen Kopplungsbalg ebenfalls mit einer Motorachse verbunden. Die Lineartischantriebe wurden im Rahmen einer dritten Diplomarbeit entwickelt und hinsichtlich der Verfahrgenauigkeit getestet. Sie erreichen bei einer theoretischen Auflösung von 50 nm pro Schritt im Experiment aufgrund des Spiels der Mechanik Positioniergenauigkeiten von unter 500 nm, die durch entsprechende Korrekturen der Schrittweiten noch verringert werden können [130]. In derselben Arbeit wurden die Abbildungseigenschaften des Spiegels mit sichtbarem Licht der Wellenlänge 532 nm untersucht und dessen Eignung für den XUV-Spektralbereich durch Reflexionsmessungen an der Beamline BW3 am HASYLAB/DESY nachgewiesen. Die Reflektivität liegt dabei für den Energiebereich um 90 eV bei etwa 50 %, was auf eine Rauigkeit der Oberfläche von 5 nm rms hindeutet. Für die hier gezeigten Experimente mit der Harmonischenstrahlung musste die Justage des Spiegels und die Vermessung des Fokus unter Vakuumbedingungen erneut durchgeführt werden.

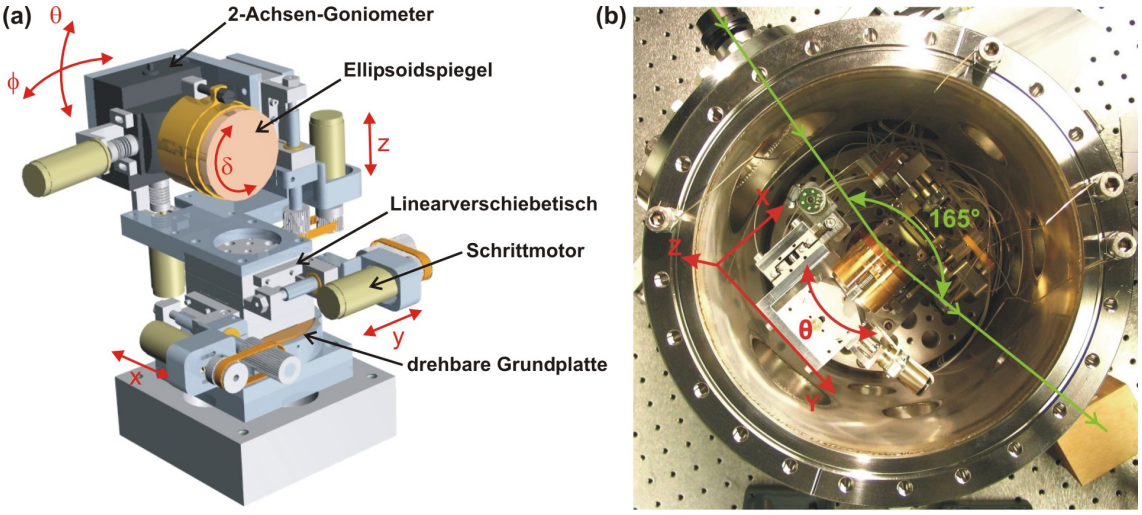


Abbildung 3.12: (a) 3D-Konstruktionsansicht des 6-Achsen-Spiegelhalters. (b) Aufsicht auf die Spiegelkammer mit eingebautem Ellipsoidspiegel. Der Strahlweg mit dem Ablenkwinkel von 165° ist grün markiert.

3.4.3 Experimentierkammer

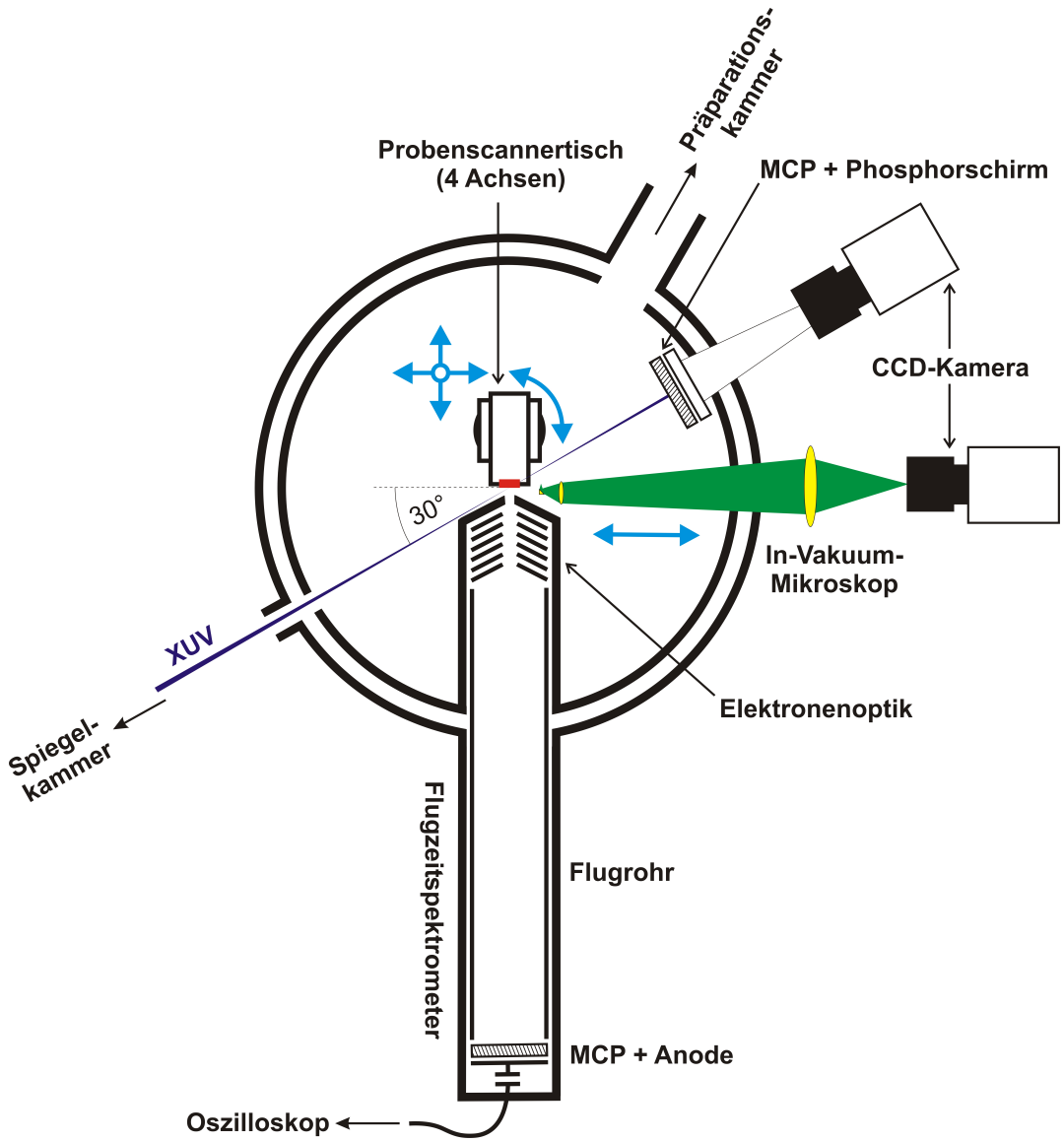


Abbildung 3.13: Schematischer Aufbau der Experimentierkammer.

In der Experimentierkammer findet die Wechselwirkung der Harmonischenstrahlung mit den zu untersuchenden Materialien statt. Der vom Ellipsoidspiegel reflektierte und in der Kammermitte auf die Probe fokussierte XUV-Strahl trifft in der Geradeausrichtung auf einen MCP-Phosphorschirm-Detektor mit zugehöriger CCD-Kamera, um die Strahlposition und -intensität vor der Messung überprüfen zu können. Im Zentrum der Kammer ist der Probenscannertisch montiert, der sich aus drei schrittmotorgesteuerten Translationsachsen auf einem ebenfalls motorisierten Rotationstisch zusammensetzt. Er dient erstens zum Anfahren der Übergabeposition des Probenhalters, so dass dieser mit Hilfe der Transferstange von der Präparations- in die Experimentierkammer befördert werden kann. Für die Aufnahme der Photoemissionsspektren wird der auf dem Probenscannertisch arretierte

Probenhalter dann in die in Abb. 3.15 gezeigte Messposition gefahren. Bei strukturierten Proben ist zweitens ein Abrastern zur Aufnahme von ortsaufgelösten Spektren möglich. Da das statische, aber von der Rotorposition abhängige Magnetfeld der Schrittmotoren die Elektronentrajektorien beeinflussen und damit die Photoemissionsmessungen stören kann, sind die Motoren mit Hilfe einer µ-Metall-Ummantelung abgeschirmt. Die von der Probe emittierten Elektronen werden mit einem Flugzeitspektrometer (engl. *time-of-flight spectrometer*, TOF) detektiert, das senkrecht zu der Probenoberfläche eingebaut ist. Aus Konstruktions- und Platzgründen ist hier ein Einfallswinkel des XUV-Lichts von 60° gemessen zur Oberflächennormalen realisiert, was für das bei 45° optimale MLDAD-Signal lediglich eine Reduktion um den Faktor 0,87 zur Folge hat. Das In-Vakuum-Mikroskop ermöglicht eine Betrachtung der Oberfläche aus der Richtung des Spektrometers und damit eine exakte Positionierung des zu untersuchenden Probenbereichs vor der TOF-Öffnung. Ober- und unterhalb des Probenhalters kann jeweils eine Spule platziert werden (nicht dargestellt in Abb. 3.13, siehe aber Abb. 3.14), die zusammen in der Wechselwirkungszone ein Magnetfeld senkrecht zu der aus der Einfallsrichtung der XUV-Strahlung und der Detektionsrichtung der Elektronen gebildeten Ebene erzeugen und die Magnetisierung der untersuchten Eisenfilme parallel zur Oberfläche ausrichten. Die drei letztgenannten Komponenten der Experimentierkammer – Flugzeitspektrometer, In-Vakuum-Mikroskop und Magnetfelderzeugung – werden in den folgenden Unterkapiteln detaillierter vorgestellt.

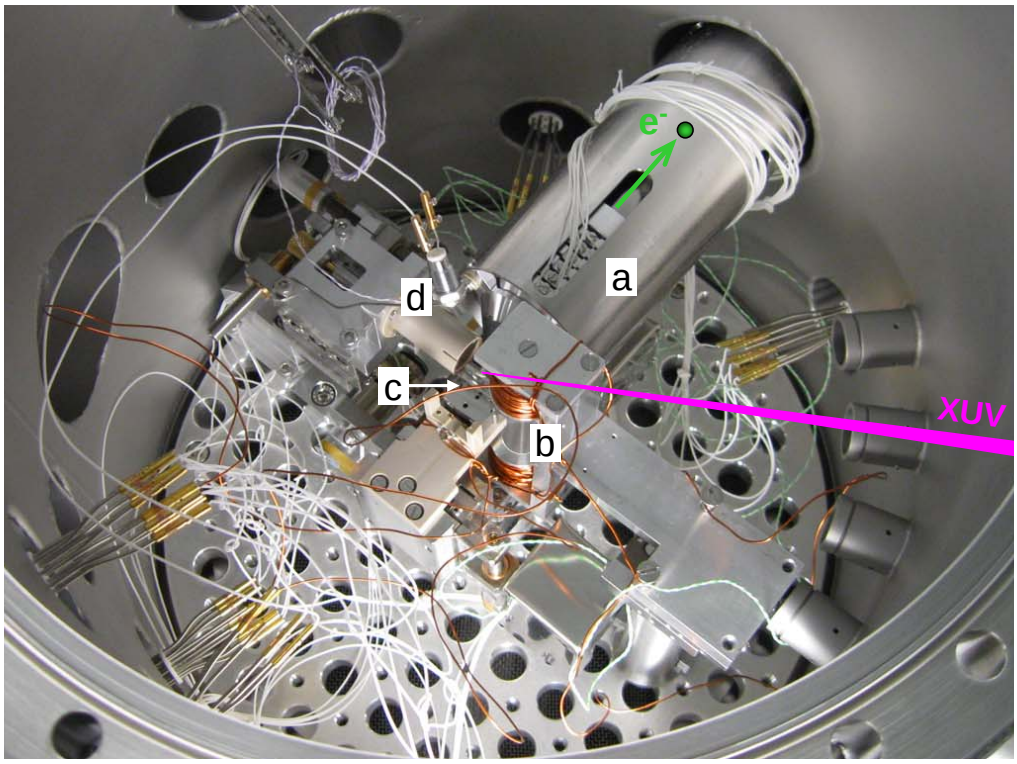


Abbildung 3.14: Aufbau der Experimentierkammer (Foto). a – TOF, b – Spulenpaar zur Magnetfelderzeugung, c – Probenhalter, d – In-Vakuum-Mikroskop mit LED zur Beleuchtung der Probenoberfläche.

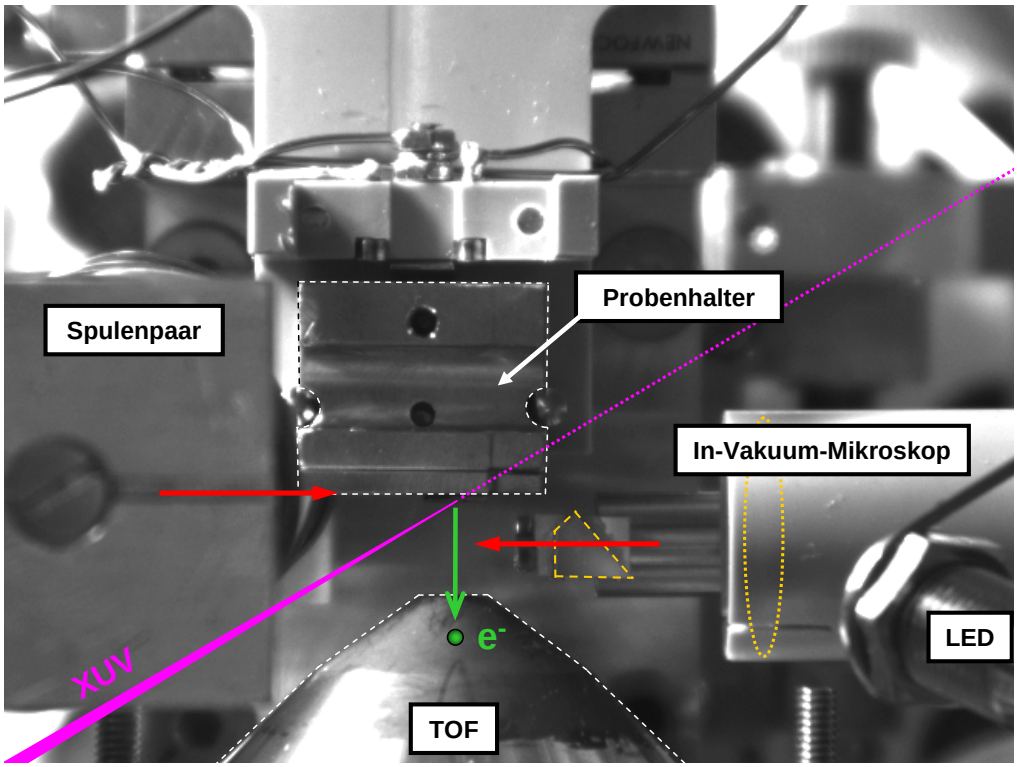


Abbildung 3.15: Aufsicht auf den Probenhalter in der Messposition vor dem TOF (aufgenommen mit der von oben auf die Wechselwirkungszone blickenden CCD-Kamera).

Flugzeitspektrometer

Im Vorderteil des Flugzeitspektrometers sorgt eine Elektronenoptik für die Kollimation der unter einem Winkel von etwa $\pm 16°$ relativ zur Oberflächennormalen austretenden Elektronen und damit für eine Erhöhung der Transmission[7] sowie für eine Verbesserung der Zeitauflösung des Spektrometers. Nach Passieren des Flugrohrs treffen sie auf den Elektronendetektor, werden dort verstärkt und mit Hilfe des Oszilloskops (Modell *waveRunner 204Xi* der Firma LeCroy) hinsichtlich ihrer Ankunftszeit sortiert. Der Zusammenhang zwischen der gemessenen Flugzeit t vom Entstehungsort auf der Probe hin zum Detektor und der kinetischen Anfangsenergie ist über die Beziehung

$$E_{\text{kin}}(t) = \frac{m_e l_{\text{eff}}^2}{2(t-t_0)^2} - U \tag{3.13}$$

gegeben. Die effektive Flugstrecke l_{eff} weicht aufgrund der Elektronenoptik und äußerer Einflüsse (z.B. magnetische und elektrische Streufelder) im Allgemeinen vom geometrischen Abstand zwischen Probe und Detektor ab. Die Parameter $C^2 \equiv m_e l_{\text{eff}}^2/2$, t_0 und U können mit Hilfe einer Simulation der Elektronenbahnen bzw. für die Einbeziehung der nicht simulierbaren Störfaktoren durch Kalibrierung anhand bekannter Spektren ermittelt werden. Aufgrund des nichtlinearen Zusammenhangs zwischen der Energie- und

[7] Der Begriff *Transmission* beschreibt in diesem Zusammenhang den Anteil der insgesamt aus der Probe emittierten Elektronen, die den MCP-Detektor erreichen.

Flugzeitskala muss auch die Signalamplitude korrigiert werden. Das mit dem TOF gemessene Signal $S(t)$ ist proportional zu der Anzahl der von der Probe emittierten Elektronen, so dass wegen der Teilchenzahlerhaltung gelten muss:

$$\begin{aligned} & \int_{t_1}^{t_2} S(t)dt = \int_{E_2}^{E_1} \tilde{S}(E)dE \\ \Rightarrow \quad & S(t)dt = -\tilde{S}(E)dE \\ \Rightarrow \quad & \tilde{S}(E) = S(t)\frac{C}{2(E+U)^{3/2}} \,. \end{aligned} \tag{3.14}$$

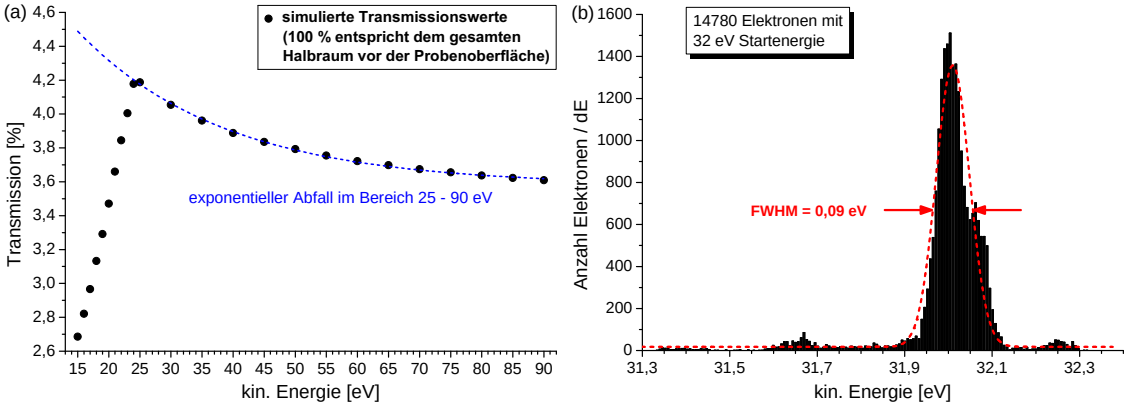


Abbildung 3.16: (a) Simulierte TOF-Transmission. Die Transmission kann im Energiebereich von 25 bis 90 eV durch die exponentiell abfallende Funktion $T(E_{\text{kin}}) = 1,71 \cdot \exp(-E_{\text{kin}}/23,65) + 3,58$ beschrieben werden (E_{kin} in eV). (b) TOF-Auflösung bei einer kinetischen Energie der Elektronen von 32 eV.

Abbildung 3.16a zeigt die simulierte Transmission des Spektrometers, wobei in der Simulation mit dem Programm *SIMION 7.0* [131] von einer punktförmigen Elektronenquelle auf einer geerdeten Oberfläche im Abstand von 7,5 mm zentral vor der TOF-Öffnung ausgegangen wird. Die Transmission ist hier als das Verhältnis von dem Raumwinkelbereich, aus dem die kugelsymmetrisch verteilten Elektronen den Detektor erreichen können, zu dem gesamten Halbraum vor der Probenoberfläche definiert. Dabei wird der maximal akzeptierte Startwinkel ab einer Energie von 25 eV durch die TOF-Öffnung mit einem Durchmesser von 4 mm, darunter jedoch durch die Detektorfläche (= aktive Fläche des MCPs) mit einem Durchmesser von 40 mm begrenzt. In dem hier relevanten Bereich der kinetischen Energien der Photoelektronen oberhalb von 25 eV wird die Transmissionsfunktion sehr gut durch einen exponentiellen Abfall beschrieben. Die theoretisch erreichbare Energieauflösung des Spektrometers von 0,09 eV bei 32 eV Startenergie (Fe 3p-Linie bei Anregung mit der 57. Harmonischen) erhält man durch eine Monte-Carlo-Simulation der Energieverteilung der auf dem Detektor auftreffenden Elektronen (Abb. 3.16b). Die 14780 Elektronen[8] sind dabei alle mit der gleichen Anfangsenergie von 32 eV aus einem ellipsenförmigen Bereich in der Größe des gemessenen XUV-Fokus (siehe Abb. 4.14) auf der

[8] Von den ursprünglich 15000 Elektronen sind nur die berücksichtigt, die den Detektor auch erreicht haben.

Probenoberfläche gestartet, während die Startpunkte innerhalb dieses Gebietes sowie die kugelsymmetrisch verteilten Startwinkel im Rahmen des Akzeptanzbereichs des TOFs zufällig ausgewählt wurden.

Die Abweichung von der kugelsymmetrischen Winkelverteilung im realen System ist durch den winkelabhängigen differentiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation bestimmt, der für freie Atome durch folgende Gleichung gegeben ist [132]:

$$\frac{d\sigma(\theta)}{d\Omega} = \frac{\sigma_{\text{tot}}}{4\pi}\left[1 + \beta P_2(\cos\theta)\right] \tag{3.15}$$

mit dem totalen Wirkungsquerschnitt σ_{tot}, dem Asymmetrieparameter β ($-1 \leq \beta \leq 2$) und dem Legendre-Polynom 2. Ordnung $P_2(\cos\theta) = \frac{1}{2}(3\cos^2\theta - 1)$. θ ist der Winkel zwischen der Polarisation des Lichts und der Emissionsrichtung des Elektrons.[9] Bei Festkörperspektren ist die Winkelabhängigkeit der Photoemission nach den Ausführungen in Ref. [71] und [134] durch die direkten optischen Übergänge zwischen dem Ausgangszustand $E_{\text{i}}(\vec{k})$ und dem Endzustand $E_{\text{f}}(\vec{k})$ innerhalb der Bandstruktur gegeben, die über die Energieerhaltung $E_{\text{f}}(\vec{k}) - E_{\text{i}}(\vec{k}) = \hbar\omega$ zusammenhängen. Der reduzierte Wellenvektor innerhalb der ersten Brillouin-Zone ist hier mit $\vec{k}$ bezeichnet. Beim Austritt aus der Oberfläche ins Vakuum (dritter Schritt des 3-Stufen-Modells der Photoemission, vgl. Kapitel 2.4) bleibt die Komponente des Wellenvektors parallel zur Oberfläche erhalten, so dass gilt:

$$K_{\parallel} = k_{\parallel} + G_{\parallel} \tag{3.16}$$

mit dem Wellenvektor des emittierten Photoelektrons $\vec{K}$ und einem reziproken Gittervektor $\vec{G}$. Aus der Beziehung

$$E_{\text{kin}} \equiv \hbar^2(K_{\perp}^2 + K_{\parallel}^2)/(2m_e) = E_{\text{f}}(\vec{k}) - E_{\text{vac}} \tag{3.17}$$

mit dem Vakuumlevel E_{vac} ergibt sich nach Einsetzen von Gleichung 3.16 der Wert für $K_{\perp}$:

$$K_{\perp} = \sqrt{\frac{2m_e}{\hbar^2}\left(E_{\text{f}}(\vec{k}) - E_{\text{vac}}\right) - \left(k_{\parallel} + G_{\parallel}\right)^2}\,. \tag{3.18}$$

Bei bekannter Bandstruktur sind deshalb die Emissionsrichtungen und Energien der Photoelektronen durch die obigen Gleichungen gegeben. Hinzu kommen allerdings die komplexen Streu- und Stoßprozesse beim Transport zur Oberfläche (zweiter Schritt des 3-Stufen-Modells), die das Elektronensignal beeinflussen. Da im Rahmen dieser Arbeit die Messgeometrie und damit der Detektionswinkelbereich fixiert waren, soll an dieser Stelle nicht weiter auf die winkelabhängigen Effekte eingegangen werden (für detaillierte Ausführungen siehe z.B. [71, 80, 134]). Außerdem müssen die gemessenen Spektren hinsichtlich der Detektortransmission und der Energieauflösung - üblicherweise angenähert durch eine Gauß-Funktion (rote Linie in Abb. 3.16b) - korrigiert werden, um quantitative Aussagen machen zu können.

[9] Für die Xe 4d-Linie nimmt der Asymmetrieparameter bei 90 eV Anregungsenergie einen Wert von 0,67 an [133], so dass für $\theta = 30°$ der differentielle Wirkungsquerschnitt $0,11\,\sigma_{\text{tot}}$ beträgt.

In-Vakuum-Mikroskop

In den etwa 7,5 mm breiten Zwischenraum zwischen Probe und TOF-Öffnung kann der prismenförmige 90°-Umlenkspiegel vor der ersten Linse des In-Vakuum-Mikroskops (in Abb. 3.15 von rechts kommend, gelb markiert) gefahren werden, um direkt die Oberfläche anschauen zu können und den für die Messung relevanten Bereich zentral vor dem Flugzeitspektrometer zu positionieren. Die grüne LED am rechten unteren Bildrand dient dabei zur Ausleuchtung dieses Probenareals.

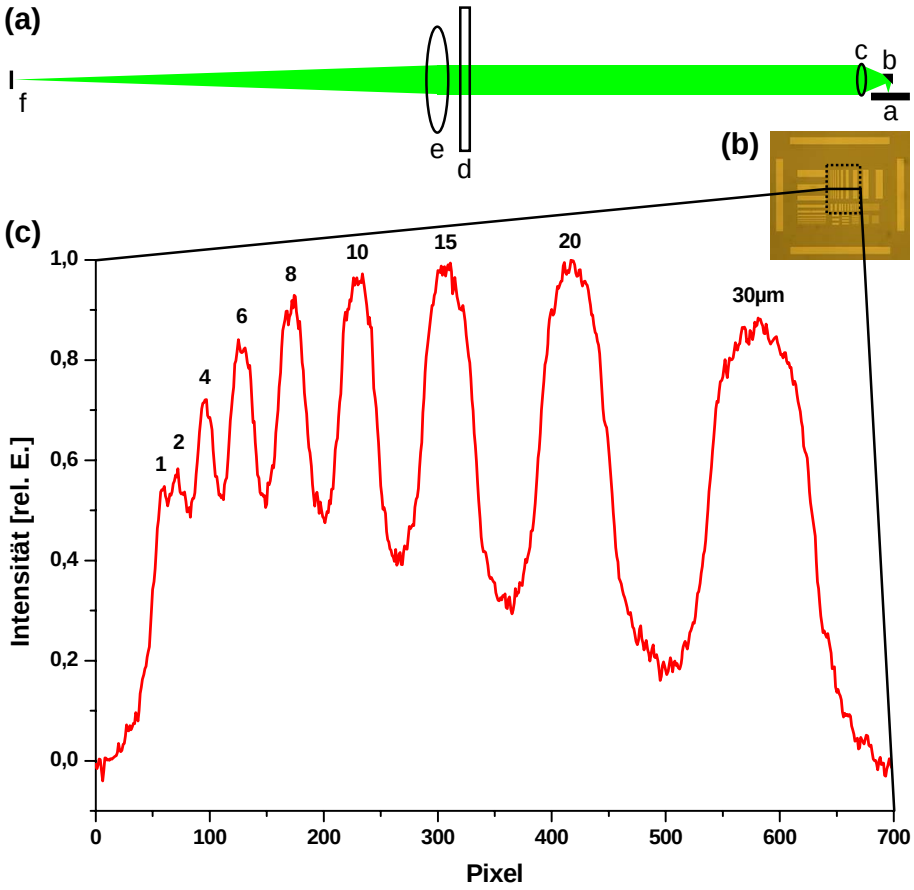


Abbildung 3.17: (a) Aufbau des In-Vakuum-Mikroskops (schematisch). a - Probe, b - 90°-Umlenkspiegel, c - Gradium-Linse ($f = 15$ mm), d - Vakuumfenster, e - Achromat ($f = 200$ mm), f - CCD-Chip. (b) Abgebildetes Testobjekt zur Bestimmung der Auflösung. Das schwarz umrandete Kästchen gibt die Größe des Bildfeldes an. (c) Intensitätsverlauf auf dem CCD-Chip in horizontaler Richtung entlang der schwarzen Linie (in vertikaler Richtung über die Streifenhöhe gemittelt). Oberhalb der Bereiche hoher Reflektivität (Permalloy-Streifen) ist deren reale Breite angegeben.

Abbildung 3.17a zeigt schematisch den Aufbau des Mikroskops, das im Vakuum aus einer Gradium-Linse[10] mit hoher numerischer Apertur besteht, die das von der Probe

[10]Bei der *LightPath Gradium-Linse* der Firma Edmund Optics ändert sich der Brechungsindex in axialer Richtung, um so Abbildungsfehler zu korrigieren. Da die Linse nicht wie bei Achromaten sonst üblich aus mehreren, aufeinandergeklebten Teilen zusammengesetzt ist, eignet sie sich sehr gut für Vakuumanwendungen.

im Abstand der Brennweite ausgehende Licht sammelt und als Parallelstrahl auf eine refokussierende Achromat-Linse außerhalb des Vakuums propagiert. Auf diese Weise ist der Einfluss des Vakuumfensters auf die Abbildungsqualität minimiert. Mit Hilfe eines Testobjekts[11] mit bekannten Strukturgrößen wurde das Mikroskop hinsichtlich der Abbildungseigenschaften charakterisiert. Es ergibt sich ein durch die Größe des Kamerachips bestimmtes Bildfeld von $338 \times 255\,\mu\text{m}^2$ sowie eine Vergrößerung von $M = 14$. Aus dem Intensitätsverlauf in horizontaler Richtung senkrecht zu den Streifen (Abb. 3.17c) folgt eine Auflösung von $< 4\,\mu\text{m}$.

Gepulstes Magnetfeld

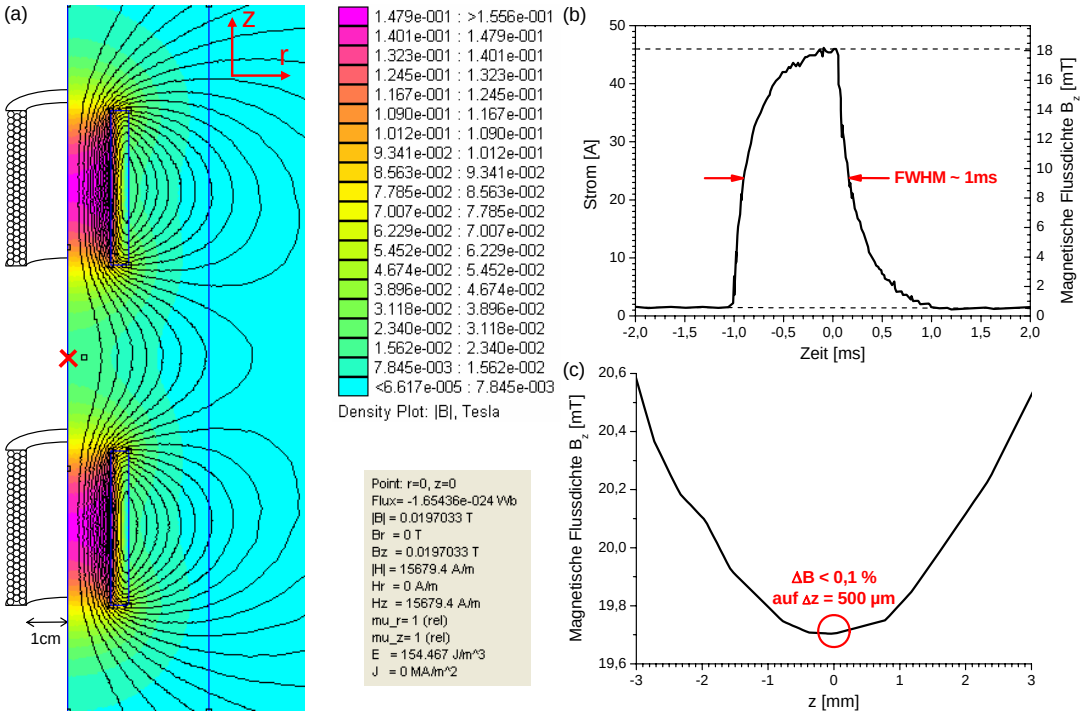


Abbildung 3.18: (a) Simulierte Verteilung der magnetischen Flussdichte $\vec{B}$ eines zylinderförmigen Spulenpaars mit jeweils 100 Wicklungen pro Spule bei einem Strom von 50 A. Die Verteilung ist rotationssymmetrisch zu der Mittelachse. Das rote Kreuz kennzeichnet die Mittenposition der zu magnetisierenden Probe; die zugehörigen Magnetfeldwerte an diesem Punkt $P(r = 0, z = 0)$ finden sich in dem grau hinterlegten Kasten unterhalb der Legende für die Farbkodierung. (b) Über einem Widerstand von $0,1\,\Omega$ gemessener Stromverlauf $I(t)$ eines Magnetfeldpulses. Die zugehörige magnetische Flussdichte $B_z = 0,394 \cdot I$ am Punkt $P(0,0)$ (rechte Achse) ergibt sich aus der Simulation. (c) Simulierter Verlauf der magnetischen Flussdichte B_z entlang der Symmetrieachse.

Für die MLDAD-Messungen wird manuell ein zylinderförmiges Spulenpaar in die Mitte der Experimentierkammer gefahren (in Abb. 3.15 von links kommend), um in der Wechselwirkungszone ein Magnetfeld parallel zur Probenoberfläche erzeugen zu können. Das

[11] Das Testobjekt besteht aus einem GaAs-Substrat, auf dem mittels Elektronenstrahllithographie verschieden breite Permalloy-Streifen aufgebracht sind (Abb. 3.17b).

zur Magnetisierung der Proben nötige B-Feld im Bereich einiger mT darf nicht permanent anliegen, weil hierdurch die Photoelektronen senkrecht zu ihrer Flugrichtung zum Detektor abgelenkt würden. Die Eisenschichten wurden daher vor Aufnahme der Photoemissionsspektren durch einen nur etwa 1 ms andauernden Strompuls von maximal 60 A durch das Spulenpaar remanent aufmagnetisiert (siehe Abb. 3.18). Unter der Annahme, dass sämtliche elektrische Energie in Wärme umgewandelt wird, erhöht sich die Temperatur des Spulendrahts bei dem kurzen Strompuls lediglich um etwa 0, 1 K, so dass keine Gefahr einer thermischen Zerstörung der Spule besteht. Die Feldverteilung der verwendeten Spulengeometrie wurde mit Hilfe des Programms *femm 4.0.1* [135] simuliert, und es ergibt sich eine über die Fokusfläche nahezu konstante Flussdichte. Deren Variation entlang der z-Richtung ist in Abbildung 3.18c dargestellt; die Änderung entlang der r-Richtung senkrecht zur Symmetrieachse ist noch geringer. Zum Vergleich wurden in Ref. [90] zur Magnetisierung der Eisenfilme ebenfalls kurze, etwa 80 Oe (das entspricht 8 mT) starke Magnetfeldpulse verwendet.

3.4.4 Probenhandhabung

Wie schon in Kapitel 2.4 erläutert, ist es für die Photoemissionsmessungen an Oberflächen entscheidend, die Proben in situ säubern und präparieren zu können, um die Kontamination durch Adsorbate möglichst gering zu halten. Im ersten Schritt werden dazu maximal sechs Halter mit chemisch und mechanisch vorgereinigten Substraten[12] durch die oberseitige Flanschöffnung in der Schleusenkammer auf das Probenkarussell gesetzt und können nach Erreichen eines ausreichend niedrigen Druckes in die Präparationskammer transferiert werden. Dort kann die Probe im zweiten Schritt mit einer Ionenkanone (Varian Ion Bombardment Gun, Modell 981-2043) gesputtert werden, um die verbliebenen Adsorbat- und Oxidschichten zu entfernen. Drittens ist das Aufbringen z.B. von Eisenschichten auf die Waferstücke mit Hilfe eines Elektronenstrahlverdampfers (e^--flux Mini Electron Beam Evaporator der Firma tectra) möglich. Die durch Ionenbeschuss gereinigte und eventuell bedampfte Probe wird viertens für die spektroskopischen Messungen in die Experimentierkammer mit dem niedrigsten Basisdruck überführt.

Der Übergabemechanismus soll im Folgenden anhand von Abbildung 3.19 näher erläutert werden: Der aus einem Grundkörper (violett) und einem auswechselbaren Blech zur Aufnahme der Waferstücke (dunkelblau) bestehende Probenhalter kann mit einer Gabel aus zwei Federkontakten auf die Transferstange aufgenommen werden, indem diese durch zwei Öffnungen im hinteren Teil des Grundkörpers geschoben und im vorderen Teil in einer Passbohrung arretiert wird. Zur Übergabe auf den Scannertisch in der Experimentierkammer wird dieser nach unten verfahren und die Transferstange gegen den U-förmigen Anschlag geschoben. Der Probenhalter gleitet nun bei einem Hochfahren der Trägerplatte mit den seitlichen Einkerbungen in die aus zwei Passstiften gebildete Führung. Das Fe-

[12] Die verwendeten GaAs-Waferstücke wurden z.B. im Reinraum mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad gesäubert.

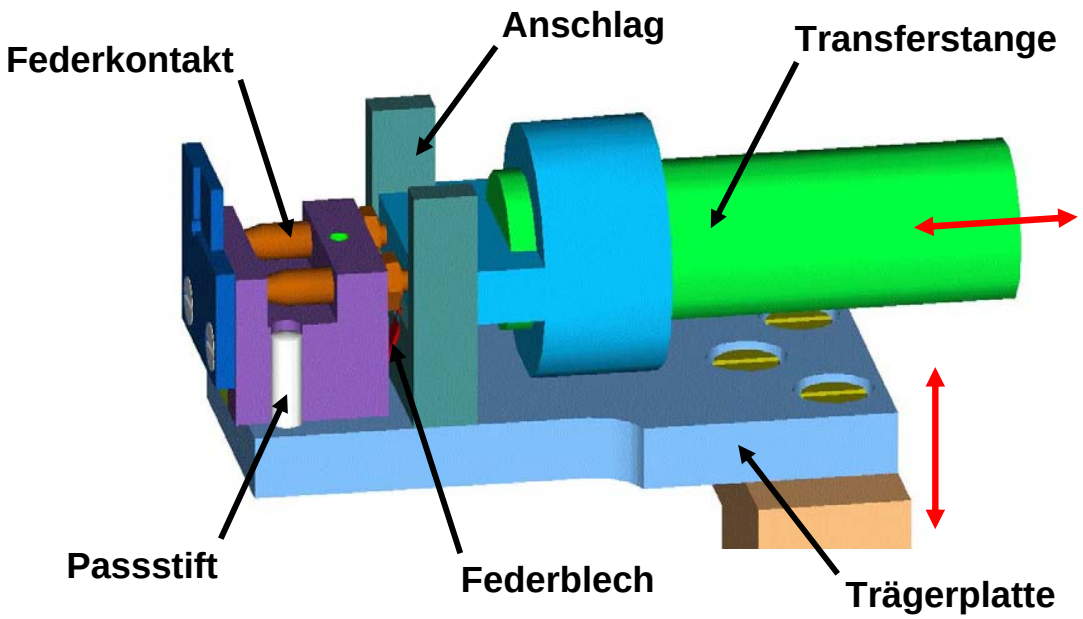


Abbildung 3.19: 3D-Konstruktionsansicht des Probentransfersystems.

derblech wird dabei gegen den Anschlag gedrückt und fixiert den Probenhalter in seiner Position. Da die Trägerplatte und der Anschlag aus dem vakuumtauglichen Kunststoff Polyetheretherketon (PEEK) bestehen, stellt es außerdem über die vergoldete Vorderfläche einen elektrischen Kontakt zu einem in den Anschlag gesteckten Metallstift her, von dessen Rückseite ein kaptonisolierter Draht nach außen geführt wird. Der Probenhalter besteht aus nicht magnetisierbarem Edelstahl und kann durch die isolierte Halterung insgesamt auf eine Spannung gelegt werden. Diese Möglichkeit ist vor allem für niedrige Photonenenergien gerade oberhalb der Austrittsarbeit interessant, um die emittierten langsamen Elektronen zu der Spektrometeröffnung hin zu beschleunigen. Für den Test des Scannertisches wurden Photoemissionsmessungen mit der dritten Harmonischen des Lasersystems ($\lambda = 267\,\mathrm{nm}$ bzw. $E = 4,65\,\mathrm{eV}$) durchgeführt, so dass an den Probenhalter eine Spannung von $-15\,\mathrm{V}$ angelegt werden musste. Bei den Messungen mit der XUV-Strahlung der Harmonischenquelle war der Halter geerdet. Die manuell drehbare und vertikal verschiebbare Probenaufnahme der Präparationskammer ist analog zu der in der Experimentierkammer aus Abbildung 3.19 aufgebaut, da auch hier eine isolierte Halterung für die Möglichkeit der Ionenstrommessung sinnvoll ist. Lediglich bei dem Probenkarussell in der Schleusenkammer ist weder eine elektrische Isolation noch eine Fixierung des Probenhalters notwendig, so dass der Anschlag fehlt und nur die zwei Passstifte vorhanden sind.

Kapitel 4

Messdaten und Auswertung

4.1 Charakterisierung des Laserstrahls

Da die Harmonischenerzeugung empfindlich von der Laserintensität und Strahlstabilität abhängt, ist es für den Aufbau der HHG-Beamline notwendig, neben den mit kommerziell erhältlichen Messgeräten im täglichen Betrieb des Lasersystems kontrollierten Parametern (Pulsdauer, Pulsenergie und Spektrum) auch das Strahlprofil, die Divergenz, die Strahlqualität sowie das Driftverhalten zu kennen. Die Messungen dieser Laserdaten werden im Folgenden vorgestellt.

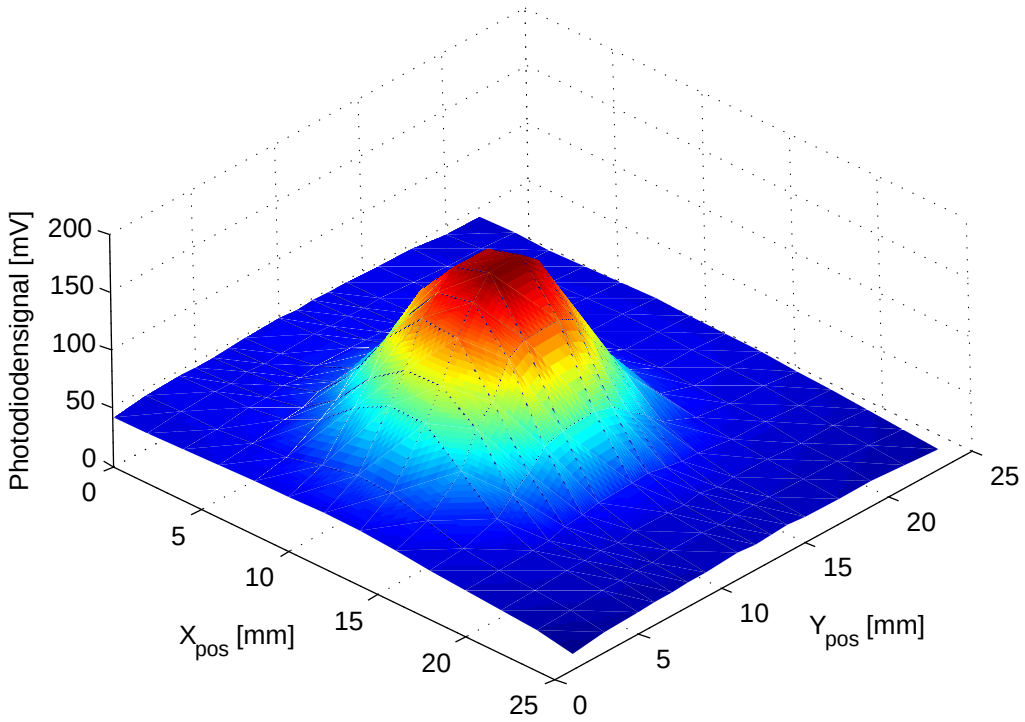


Abbildung 4.1: Intensitätsprofil am Anfang der Beamline.

An zwei Positionen des Strahlengangs - zum einen im Bereich des Einkoppelfensters zu Beginn der Beamline und zum anderen in der Nähe der Laserblende, die mit einem maximalen Durchmesser von 25 mm bei der weiteren Strahlpropagation als Apertur berücksichtigt werden muss - wurde das Intensitätsprofil durch Abrastern mit einer Photodiode (Modell *DET10A* der Firma Thorlabs mit einer aktiven Fläche von $0,8\,\mathrm{mm}^2$) vermessen (siehe Abb. 4.1). Die Strahlbreite beträgt vorne in der horizontalen x-Richtung (der vertikalen y-Richtung) $W_{x(y)} = 6,8\,\mathrm{mm}$ ($7,0\,\mathrm{mm}$) und bei der Laserblende $W_{x(y)} = 9,3\,\mathrm{mm}$ ($9,6\,\mathrm{mm}$). Unter der Annahme, dass man sich im Fernfeld und somit im Bereich des linear ansteigenden Strahldurchmessers befindet, ergibt sich aus den gemessenen Werten eine Divergenz von $0,53\,\mathrm{mrad}$ ($0,56\,\mathrm{mrad}$) bzw. ein Öffnungswinkel von $\Theta = 0,06°$.

Zur Bestimmung der Strahlqualität wurde mittels eines einfachen Aufbaus bestehend aus einer Linse und einer CCD-Kamera, die entlang der Strahlachse verschoben werden konnte, der charakteristische Parameter M^2 ermittelt. Für einen idealen Gauß-Strahl mit einer aus den oben angegebenen Werten für W_x und W_y errechneten mittleren Strahlbreite $W = 9,45\,\mathrm{mm}$ vor der Laserblende ergibt sich für die zur M^2-Messung sowie ebenfalls zur Fokussierung des Lasers in das Gastarget verwendete Linse mit der Brennweite $f = 1000\,\mathrm{mm}$ ein beugungsbegrenzter Spot mit einem Strahlradius von $W_0 = 33,3\,\mu\mathrm{m}$. Aus diesen Werten errechnet sich die Rayleigh-Länge zu $z_0 = 4,35\,\mathrm{mm}$. Bei der Auswertung der Kamerabilder wurden die Strahlbreiten gemäß Gleichung 2.12 bestimmt, mit der Funktion 2.13 angefittet (durchgezogene Linien in Abb. 4.2), und man erhält $M_x^2 = 1,79 \pm 0,21$ und $M_y^2 = 2,11 \pm 0,23$, d.h. die im Experiment erreichbare Fokusgröße ist in etwa verdoppelt gegenüber dem Idealfall. An einem ähnlichen Lasersystem der Firma Coherent, dessen Laserpulse ebenfalls zur Harmonischenerzeugung genutzt werden, wurden vergleichbare Werte von $M_x^2 = 1,85$ und $M_y^2 = 1,66$ gemessen [136].

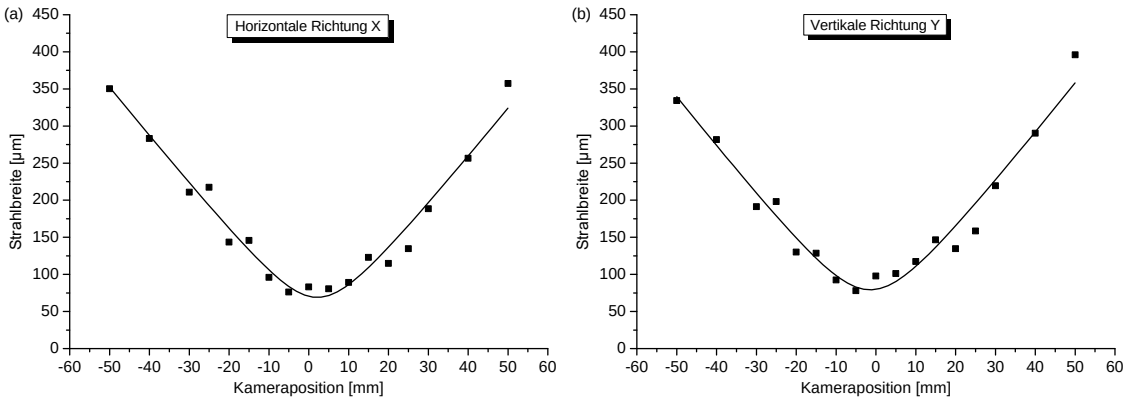


Abbildung 4.2: Strahlbreite W_x (a) und W_y (b) in Abhängigkeit von der Kameraposition entlang der Strahlausbreitungsrichtung z (Ausgangsposition willkürlich in der Nähe des minimalen Strahlquerschnitts gewählt).

Ein weiterer wichtiger Aspekt ist die räumliche Stabilität des Laserstrahls, da eine Strahllageänderung das ins Targetröhrchen gebohrte Loch vergrößert und die daraus resultierende Variation der Gasdichte die Harmonischenerzeugung beeinflusst. Um die Ver-

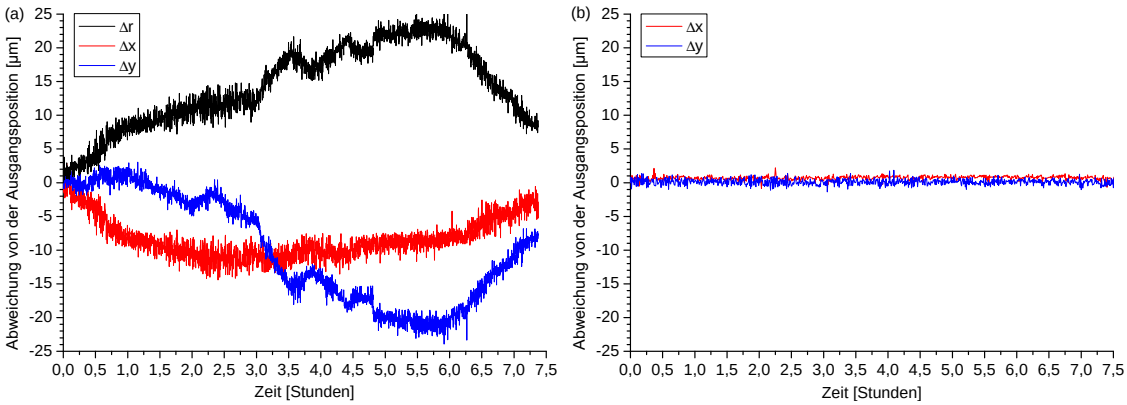


Abbildung 4.3: Abweichungen von der Ausgangsposition des Strahls in horizontaler (Δx), vertikaler (Δy) sowie radialer Richtung ($\Delta r = \sqrt{\Delta x^2 + \Delta y^2}$) ohne (a) und mit Strahlstabilisierung (b) in Abhängigkeit von der Betriebsdauer des Lasersystems.

änderung der Strahlposition im Target zu beobachten, wurde diese mit Hilfe einer CCD-Kamera in dem Referenzstrahlengang außerhalb des Vakuums über einen Zeitraum von ca. 7,5 Stunden aufgezeichnet (Abb. 4.3a). Es zeigt sich eine Driftbewegung vor allem in vertikaler Richtung von mehr als 20 µm, welche sich in einer deutlichen Reduzierung des Photoemissionssignals in der Experimentierkammer bzw. einer Verschlechterung des HH-Strahlprofils bemerkbar macht. Da sich der Kamerachip im Brennpunkt der Fokussierlinse befindet, entspricht die räumliche Änderung der Fokusposition Δr einer Winkelabweichung $\Delta\alpha$ des Strahls von $\Delta\alpha[\mu\text{rad}] = 1,33 \cdot \Delta r[\mu\text{m}]$. Die Strahlstabilisierung kann diese Strahllageänderungen kompensieren, wie Abbildung 4.3b zeigt, und ermöglicht Messungen mit deutlich stabileren Photonenflüssen. Zur Bestimmung der Intensitätsfluktuationen wurde der mittlere Pixelwert eines Rechtecks fester Größe um den Laserspot herum bei der Messung aus Abbildung 4.3a ebenfalls mit gespeichert. Hier ergeben sich Schwankungen von maximal +3% bis -4% der mittleren Intensität (Standardabweichung 1,9 %), wobei im Gegensatz zu den räumlichen Änderungen der Strahllage keine Langzeitdrifts zu erkennen sind.

4.2 SHG an Oberflächen

An dem Messplatz für den Nachweis der an einer Festkörperoberfläche erzeugten zweiten Harmonischen wurden dünne Permalloyfilme als Testobjekte untersucht, um daran die Eignung des Aufbaus für Magnetisierungsmessungen zu demonstrieren.

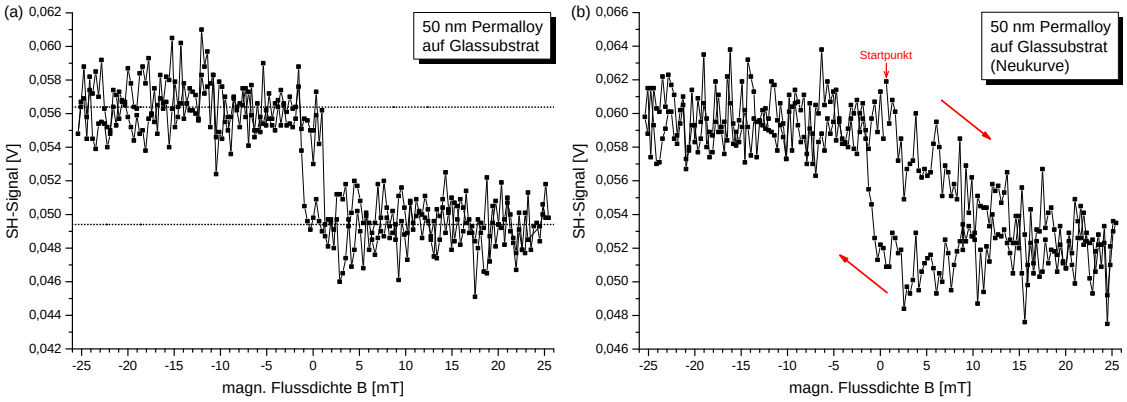


Abbildung 4.4: (a) Hysteresekurve von Py/Glas. (b) Neukurve gemessen nach vorheriger Entmagnetisierung der Probe. Die Pfeile geben den Verlauf der Magnetfeldvariation an. Ein Datenpunkt ist jeweils über 10.000 Messwerte gemittelt. Die Messkurven wurden um $-0,61$ mT verschoben, so dass sie symmetrisch zum Nullfeld sind.

In Abbildung 4.4a ist eine typische Hystereseschleife der Proben (50 nm Permalloy auf einem Glassubstrat) dargestellt. Aus der Abhängigkeit des SH-Signals vom externen Magnetfeld ergibt sich eine Koerzitivfeldstärke von 11 Oe und eine durch Gleichung 2.22 gegebene Asymmetrie von 0,07, die man aus dem Fit einer Konstanten an den oberen und unteren Bereich gleichbleibender Sättigungsmagnetisierung erhält (gepunktete Linien). Aus den Standardfehlern des Fits folgt mit der Gaußschen Fehlerfortpflanzung eine Unsicherheit von $\pm 3\,\%$ für den Wert der Asymmetrie. Bei der Neukurve (Abb. 4.4b), die nach Anlegen eines Wechselfeldes mit einer Entmagnetisierungsdrossel zur Zerstörung der magnetischen Vorzugsrichtung gemessen wurde, zeigt sich eine langsamer abnehmende SH-Intensität bei stärker werdendem Magnetfeld, so dass man anhand der Steigung den magnetischen Ausgangszustand der Probe erkennen kann. Melnikov *et al.* haben im Rahmen zeitaufgelöster Demagnetisierungsmessungen Hysteresekurven an einer 20 nm dicken Permalloyschicht auf einem Si(001)-Substrat aufgezeichnet. Die Asymmetrie von etwa 0,1 ist mit dem hier gemessenen Wert vergleichbar, während das Koerzitivfeld aufgrund der differierenden Schichtdicke und des unterschiedlichen Substratmaterials jedoch einen deutlich geringeren Wert aufweist [137]. Die Oberflächensensitivität der Messmethode wird anhand von Vergleichsproben mit einer 10 nm dicken Golddeckschicht auf dem Permalloy deutlich, bei denen keine signifikante Hysterese, sondern lediglich ein magnetfeldunabhängiges SH-Signal beobachtet werden konnte. Nimmt man einen für 800 nm anhand der Daten aus Ref. [138] interpolierten Wert von $k = 4,92$ für den Brechungsindex $\tilde{n} = n - ik$ für Gold an, so ergibt sich durch die Formel $\delta z = \lambda/(2\pi k)$ eine Eindringtiefe δz von 26 nm.

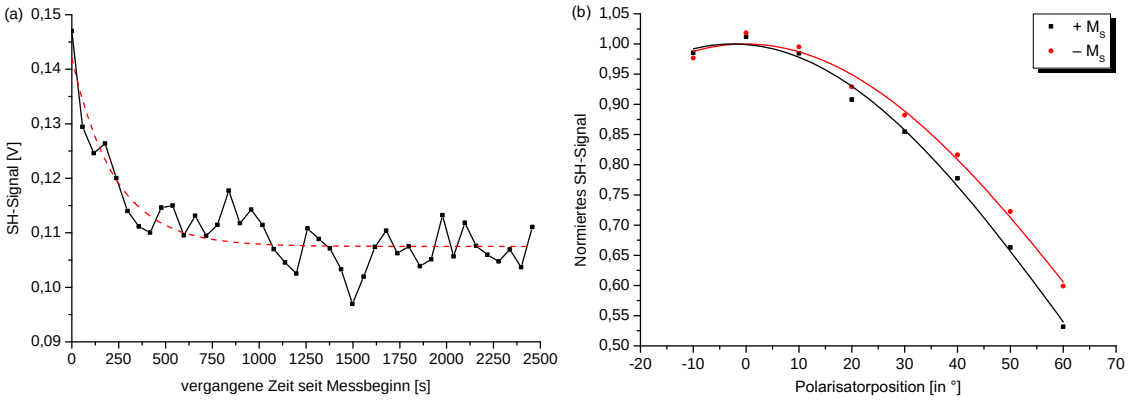


Abbildung 4.5: (a) Abhängigkeit des SH-Signals von der Messdauer. An die Messdaten ist eine Exponentialfunktion $f(t) = a_0 \cdot \exp(-t/\tau) + a_1$ mit einer Abklingzeit $\tau = 229 \pm 39$ s angepasst (rot gestrichelte Linie). (b) Normiertes SH-Signal in Abhängigkeit von der Polarisatorstellung für die zwei entgegengesetzten Sättigungsmagnetisierungen $\pm M_s$. Für den Fit wurde eine $\cos^2$-Funktion verwendet (durchgezogene Linien).

Das SH-Signal hängt empfindlich von der Intensität des eingestrahlten Laserlichts ab und ist bei einem zu hohen Wert oberhalb der Zerstörschwelle des Materials unmittelbar nach Einschalten des Lasers sehr stark, nimmt dann aber innerhalb weniger Sekunden auf einen nicht mehr messbaren Wert ab. Nach der Einstellung eines passenden Arbeitsbereichs durch die Variation der Fokusgröße, Laserleistung und Pulsdauer beobachtet man eine exponentielle Abnahme der SH-Intensität in Abhängigkeit der Messdauer (siehe Abb. 4.5a), die nach einigen Minuten einen konstanten Wert annimmt. Untersuchungen z.B. von Tom *et al.* [139] haben gezeigt, dass die von einer Rh(111)-Oberfläche stammende SH-Intensität mit zunehmender Sauerstoffexposition ebenfalls einen exponentiellen Abfall zeigt. Dieses Ergebnis ist qualitativ mit einer reduzierten Polarisierbarkeit der Leitungsbandelektronen der Metalloberfläche in der Nachbarschaft der stark gebundenen und elektronegativen Sauerstoffatome zu erklären. Im Allgemeinen zeigt sich jedoch ein kompliziertes Verhalten des SH-Signals in Folge von Adsorbaten [28]. Außerdem wird die SH-Intensität über die Temperaturabhängigkeit der Koeffizienten der Suszeptibilität und der Reflektivität von der in der Probe absorbierten Laserleistung beeinflusst. Da das durch Femtosekundenpulse angeregte Elektronen- und Spinsystem innerhalb einiger Pikosekunden relaxiert [14], sind die hier beobachteten, langen Zeitskalen nur mit einer makroskopischen Temperaturstabilisierung des Systems aus Probe und Halter durch Wärmeleitung sowie durch den Einfluss von Adsorbaten oder die Oxidation der Probe zu erklären. Abbildung 4.5b verdeutlicht die Änderung der Polarisation der SH-Strahlung bei unterschiedlicher Ausrichtung der Magnetisierung. Anhand der Verschiebung der beiden Fitkurven lässt sich eine Polarisationsdrehung von etwa 2° feststellen.

4.3 Charakterisierung der XUV-Quelle

Für die Photoemissionsspektroskopie sind neben den erreichbaren Anregungsenergien vor allem hohe Photonenflüsse im Akzeptanzbereich der XUV-Optiken wichtig, um die Messzeiten zur Aufnahme der Spektren zu reduzieren. In den folgenden Kapiteln werden deshalb die Messungen zur Charakterisierung und Optimierung der XUV-Quelle im Hinblick auf die Divergenz, Intensität und Photonenenergie der aus dem Targetgas Neon emittierten Strahlung vorgestellt. Für die Aufnahme ortsaufgelöster Spektren ist außerdem ein kleiner Fokus notwendig, so dass im letzten Abschnitt auf die Bestimmung der Fokusgröße in der Experimentierkammer eingegangen wird.

4.3.1 Strahlprofil

In Abbildung 4.6a ist ein auf dem MCP-Phosphorschirm-Detektor in der Spektrometerkammer gemessenes Strahlprofil gezeigt, für das der Abstand zwischen Targetröhrchen und Laserfokus lediglich wenige Millimeter beträgt, so dass die Divergenz gemäß der Intensitätsabhängigkeit aus Gleichung 2.32 groß ist. Da der HH-Strahl unten und links durch das Reflexionsgitter sowie oben und rechts durch die zweite Blende begrenzt ist, kann als Wert aufgrund der geometrischen Einschränkungen lediglich eine untere Schranke von 6 mrad angegeben werden. Die hohe Strahldivergenz weist außerdem auf eine optimale Phasenanpassung für die lange Trajektorie hin, da α_l um etwa eine Größenordnung höher ist als α_s [61]. Die Falten und Knicke der dünnen Zirkonium-Filterfolie sind deutlich als Hell-Dunkel-Kontrast erkennbar. Dabei transmittieren die dunkelsten Bereiche lediglich 14 % der von den hellsten Zonen durchgelassenen Strahlung, so dass die Helligkeitsunterschiede für einen Absorptionskontrast aufgrund unterschiedlicher Materialstärke zu groß sind und deshalb auf einen Phasenkontrast aufgrund der Interferenz der von verschiedenen Stellen der Filteroberfläche ausgehenden Teilwellen hindeuten. Nimmt man einen Knickwinkel von 45° an, so erhöht sich die Materialstärke bei einer 150 nm dicken Folie auf 212 nm. Das Strahlprofil zeigt die integrale Intensität über den kompletten vom Zr-Filter transmittierten Spektralbereich, für den die Transmissionsänderung bei Erhöhung der Materialstärke nicht einheitlich ist. Bei einer Photonenenergie von 60 eV beträgt die Transmission einer 212 nm dicken Folie aber bereits 34 % des Ausgangswertes für die senkrecht zur Strahlausbreitungsrichtung stehende Folie (150 nm) und steigt kontinuierlich bis auf 82 % bei 100 eV an. Der Hersteller Lebow Company gibt als maximale Oberflächeninhomogenität 1 %/cm an, so dass auch hierdurch die Helligkeitsunterschiede nicht erklärt werden können. In Ref. [140] ist ein solcher Phasenkontrast an der Kante einer chrombeschichteten Siliziummembran beobachtet worden.

Durch sukzessive Verringerung des Abstands zwischen Fokussierlinse und Targetröhrchen, so dass sich das Gasmedium auf der konvergenten Seite vom Fokus wegbewegt, können Strahldivergenzen von unter einem Millirad erreicht werden. Nach einem Verfahrweg von etwa 7 mm erhält man z.B. das in Abbildung 4.6b dargestellte Strahlprofil und

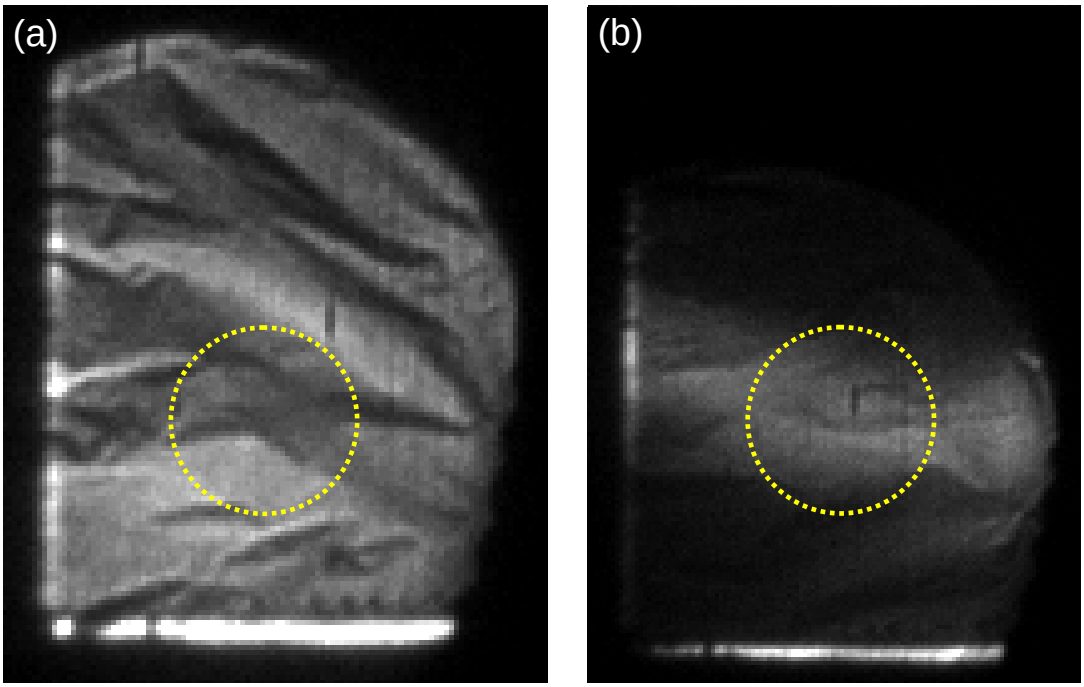


Abbildung 4.6: (a) Strahlprofil vor der Optimierung der Targetposition relativ zum Laserfokus und mit Zirkonium-Filter. (b) Strahlprofil bei dem für eine geringe Divergenz optimierten Abstand zwischen Target und Linse sowie unter Verwendung eines Zirkonium-Filters mit Parylen-Unterlage. Die gelben Kreise markieren die von einer punktförmigen Quelle mit 1 mrad Divergenz ausgeleuchtete Fläche auf dem Detektor, die in horizontaler Richtung auch dem Akzeptanzbereich des Ellipsoidspiegels entspricht.

eine Divergenz in vertikaler Richtung von $0,76 \pm 0,02$ mrad. Bei dieser Messung wurde zudem ein Zirkonium-Filter mit $0,1$ µm Parylen als stabilisierende und glättende Unterlage verwendet, so dass die Unregelmäßigkeiten im Strahlprofil reduziert sind. Aufgrund des asymmetrischen Laserfokus mit einem Aspektverhältnis von $W_y/W_x = 0,38$ ist das Strahlprofil in horizontaler Richtung wiederum durch die Aperturen im Strahlengang begrenzt. Von M. Wieland wurden in einem ähnlichen Aufbau ebenfalls Divergenzen in dieser Größenordnung gemessen [35]. Salières *et al.* haben die Divergenz in Abhängigkeit von Laserintensität und Harmonischenordnung studiert und auch deren Zunahme für steigende Intensitäten beobachtet [141], während Nisoli *et al.* die Abhängigkeit von der relativen Position von Gasmedium und Fokus untersucht und ebenfalls eine Erhöhung bei Verringerung dieses Abstands für die Harmonischen im Plateaubereich festgestellt haben [142]. Die Position des Erzeugungsmediums vor dem Laserfokus ist bei den hier verwendeten Intensitäten und der deshalb zu berücksichtigenden Defokussierung der Fundamentalen außerdem im Einklang mit den Resultaten von Bellini *et al.* [143], die umfangreiche Studien zur Abhängigkeit der Harmonischeneffizienz von dem Fokus-Target-Abstand durchgeführt haben, sowie mit dem experimentellen Aufbau am *Korea Advanced Institute of Science and Technology* [64, 144] mit vergleichbaren bzw. leicht höheren Intensitäten. Bei deutlich kleineren Intensitäten und Mediumlängen, so dass in der Phasenanpassungsbedingung hauptsächlich

die geometrische Dispersion und die atomare Dipolphase berücksichtigt werden müssen, ist dagegen eine Mediumposition im divergenten Teil des Laserstrahls (also hinter dem Fokus) vorteilhaft [49, 50].

4.3.2 Spektrale Eigenschaften

Neben dem Strahlprofil können durch die Betrachtung der ersten Beugungsordnung des Reflexionsgitters auch die spektralen Eigenschaften der XUV-Strahlung in der Spektrometerkammer untersucht werden.

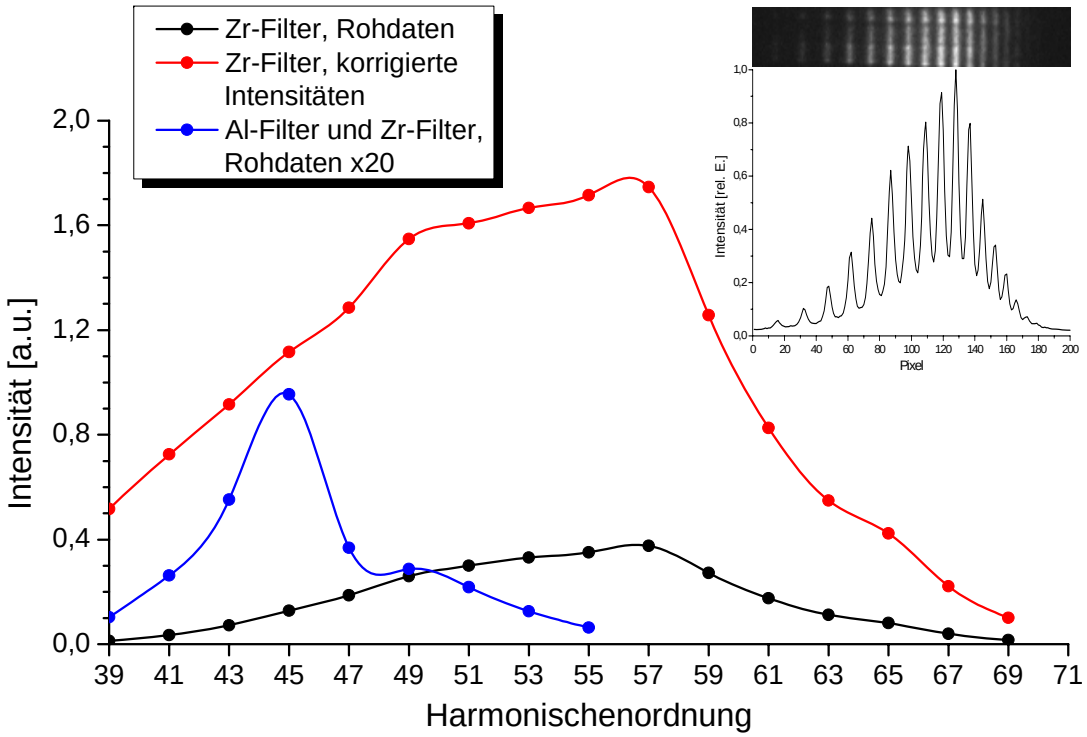


Abbildung 4.7: Typische Harmonischenspektren. Die Kurven sind durch Spline-Interpolationen der Messpunkte gewonnen und deuten den Verlauf der Einhüllenden der Spektren an. Die kleine Grafik rechts zeigt den relevanten Ausschnitt des CCD-Kamerabildes des Phosphorschirms für das vom Zr-Filter transmittierte Spektrum sowie den zugehörigen Intensitätsverlauf in horizontaler Richtung (vertikal gemittelt).

In Abbildung 4.7 ist ein bezüglich maximaler Emission in der 57. Harmonischen ($\hbar\omega = 88,34\,\mathrm{eV}$ für $\lambda_0 = 800\,\mathrm{nm}$) optimiertes Spektrum zu sehen. Die schwarzen Messpunkte repräsentieren die direkt gemessenen Intensitäten, während die rote Kurve bezüglich der Filtertransmission und der Gittereffizienz korrigiert ist und unter Annahme einer über den betrachteten Energiebereich konstanten Detektorantwort das eigentlich aus dem Targetgas emittierte Harmonischenspektrum widerspiegelt. Das blaue Spektrum ist mit einer zusätzlich zum Zr-Filter in den Strahlengang gefahrenen Al-Folie gemessen und zeigt die Absorptionskante des Aluminiums zwischen der 45. und 47. Harmonischen. Die Harmonischenintensitäten werden aus dem Kamerabild des Detektors folgendermaßen extrahiert:

Zunächst erfolgt die Zuordnung der Linien zu den Harmonischenordnungen gemäß der Spektrometereigenschaften, indem mit Hilfe von Gleichung 3.12 bei bekanntem Abstand des Detektors zum Gitter die Linienabstände berechnet werden. Eine zweite, direkte Möglichkeit ist die Kalibrierung anhand der Lage der Al-Absorptionskante. Nach einem Untergrundabzug ergeben sich die Intensitäten durch Integration über den Helligkeitsverlauf einer Linie im Spektrum in horizontaler Richtung (jeweils von einem Minimum zwischen zwei Linien zum darauffolgenden) und Mittelung entlang der Vertikalen.

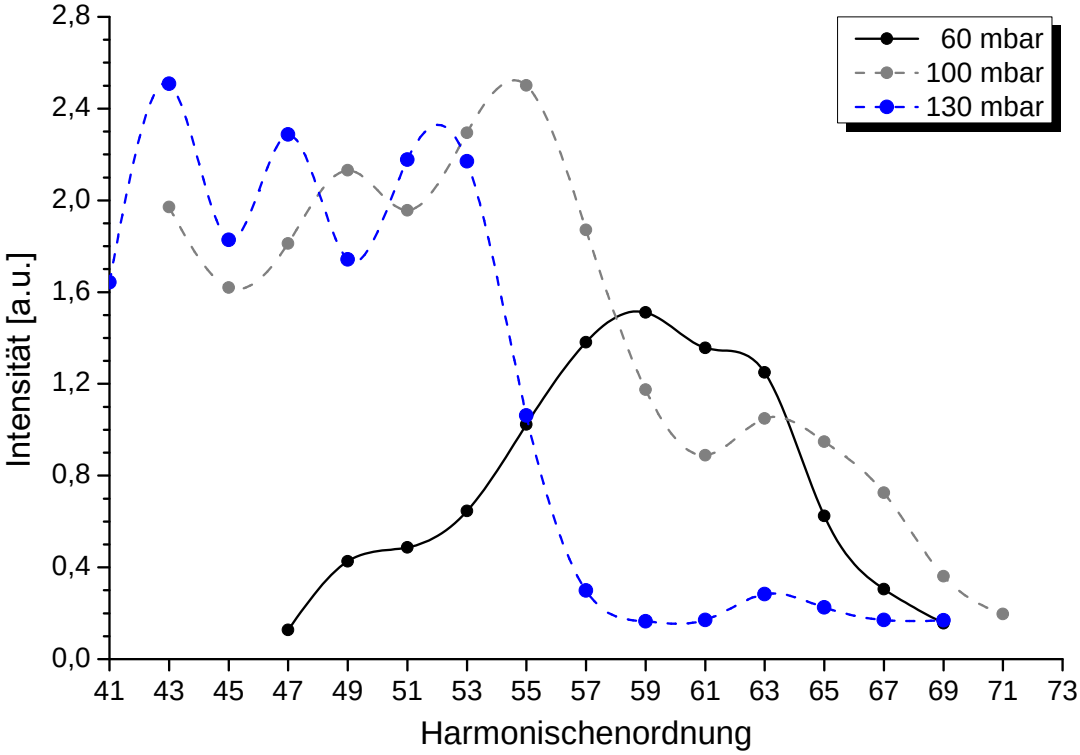


Abbildung 4.8: Dargestellt sind drei bei Targetdrücken von 60 mbar (schwarz), 100 mbar (grau) und 130 mbar (blau) sowie bei konstanter Laserintensität von etwa $1,3 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$ aufgenommene HH-Spektren.

Die Abbildung 4.8 zeigt drei Harmonischenspektren, die bei niedrigem, mittlerem und hohem Targetdruck gemessen wurden, so dass man aufgrund der nicht veränderten übrigen Parameter den Einfluss der Gasdichte auf die spektralen Eigenschaften der erzeugten Harmonischenstrahlung untersuchen kann. In einem ähnlichen Aufbau wurden von Dachraoui *et al.* die Abhängigkeiten der Harmonischenerzeugung von verschiedenen Parametern untersucht [145], so dass sich die dort vorgestellten Messergebnisse und die anhand der theoretischen Modelle aus Kapitel 2.3 berechneten Spektren sehr gut mit den im Rahmen dieser Arbeit aufgenommenen Daten vergleichen lassen. Die Messungen für verschiedene Targetdrücke zeigen trotz der längeren Fokussierung ($f = 1\,\mathrm{m}$ im Vergleich zu $f = 0,55\,\mathrm{m}$) und eines differierenden einstellbaren Druckbereichs übereinstimmend folgende charakteristische Tendenzen:

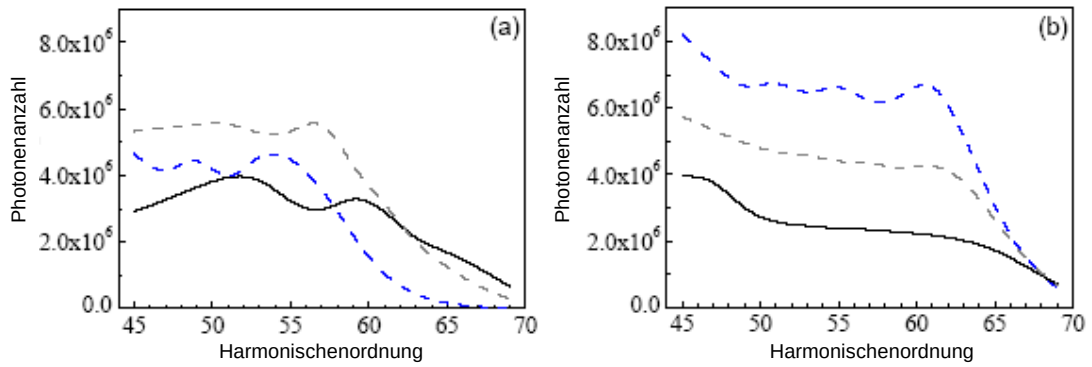


Abbildung 4.9: Harmonischenspektren berechnet für Neon und einen anregenden Laserpuls mit 45 fs Pulsdauer sowie einer Spitzenintensität im Vakuum von $8 \cdot 10^{14}\,\mathrm{W/cm^2}$. Der Fokus liegt in der Mitte der 3 mm langen Gaszelle. Die Spektren wurden berechnet für Drücke von 50 mbar (schwarze durchgezogene Linie), 110 mbar (grau gestrichelte Kurve) und 210 mbar (blau gestrichelte Kurve) mit (a) und ohne (b) Brechung der Fundamentalen (aus [145], der numerische Code zur Berechnung der Spektren ist in [146] beschrieben).

- Für die niedrigen Harmonischen mit der Ordnung $q < 49$ nimmt die Erzeugungseffizienz mit steigendem Druck zu.
- Der Cut-off hängt vom Druck ab und verschiebt sich für hohe Drücke hin zu niedrigeren Harmonischenordnungen.
- Bei niedrigem Druck (60 mbar) beobachtet man eine deutlich geringere Erzeugungseffizienz für die niedrigen Harmonischen, im mittleren ($q > 57$) und Cut-off-Bereich aber ist sie vergleichbar mit der bei 100 mbar gemessenen.

Die mit ähnlichen Parametern berechneten theoretischen Spektren geben die experimentell gefundenen Abhängigkeiten sehr gut wieder, wie man anhand der drei Graphen in Abbildung 4.9a sehen kann. Der erstgenannte Trend zeigt sich in der Simulation ebenfalls für den hier einstellbaren Druckbereich, kehrt sich für höhere Drücke (210 mbar) aber wieder um. Im Bereich der niedrigen Harmonischen erkennt man vor allem in der blauen Kurve analog zu den Messdaten ein oszillatorisches Verhalten mit einer Periode von zwei ungeraden Harmonischenordnungen. Bei den theoretischen Modellen müssen die Propagationseffekte - insbesondere die Brechung und die dadurch bedingte Defokussierung der Fundamentalen infolge der Ionisation des Mediums - unbedingt berücksichtigt werden, um die experimentell ermittelten Spektren erklären zu können, da ansonsten die Erzeugungseffizienz mit steigendem Druck und damit einer erhöhten Anzahl an Atomen für alle Harmonischenordnungen zunimmt (siehe Abb. 4.9b). Genauer gesagt, steigt die Harmonischenemission bei ausschließlicher Betrachtung der Einzelatomantwort aufgrund des kohärenten Erzeugungsprozesses quadratisch mit der Atomdichte N_a an. Da in Abbildung 4.9b jedoch bereits Propagationseffekte in Form der Phasenanpassungsbedingung enthalten sind, allerdings berechnet für einen idealen Gauß-Strahl ohne Defokussierung, weicht die Druckabhängigkeit bereits hier deutlich vom N_a^2-Verhalten ab.

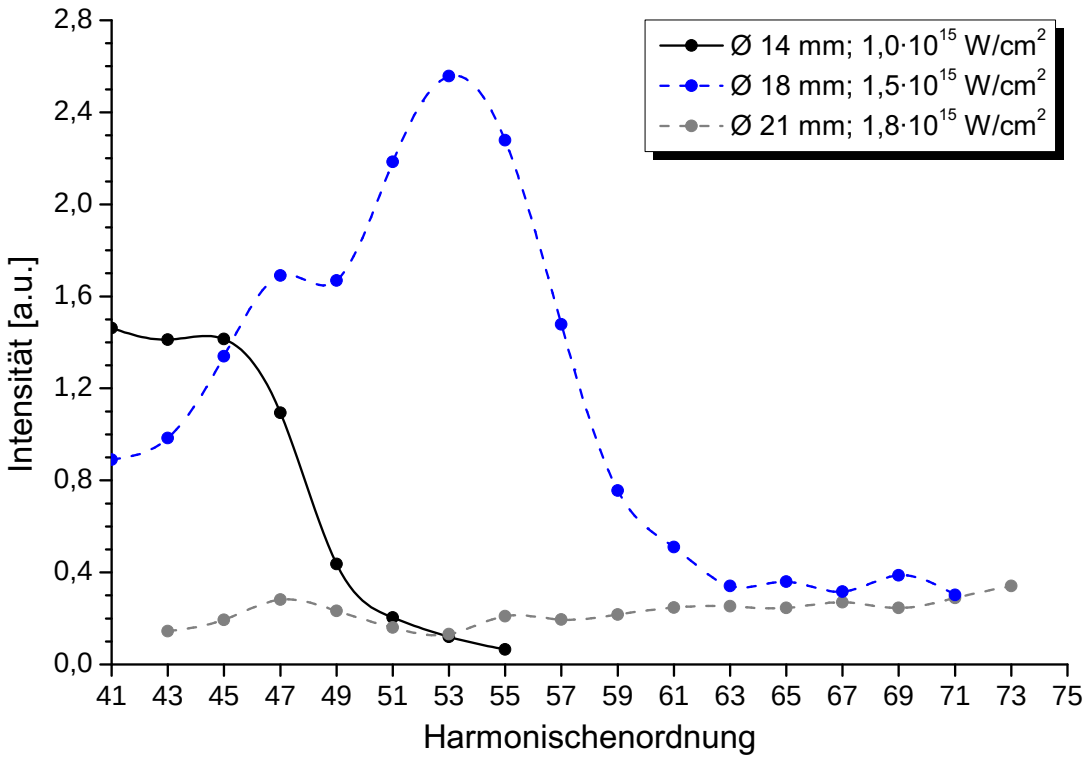


Abbildung 4.10: Dargestellt sind drei bei unterschiedlichen Blendenöffnungen und damit Laserintensitäten aufgenommene HH-Spektren. Der Targetdruck beträgt jeweils 110 mbar.

Die Intensitätsabhängigkeit der Harmonischenerzeugung wurde im Rahmen dieser Arbeit ebenfalls untersucht und ist am Beispiel der drei Spektren in Abbildung 4.10 dargestellt, die den unteren, mittleren und oberen Bereich des über den Durchmesser der Laserblendenöffnung einstellbaren Intensitätsintervalls repräsentieren. Eine maximale Erzeugungseffizienz für die zur Reflektivität des Gradienten-Multilagenspiegels passenden Harmonischenordnungen 49 bis 59 erreicht man im mittleren Intensitätsbereich (blau). Bei hohen Intensitäten beobachtet man einen im Plateau-Bereich besonders stark ausgeprägten Rückgang des Harmonischensignals, das jedoch für die hohen Harmonischenordnungen ($q > 61$) wieder eine annähernd gleiche Signalhöhe erreicht. Geringe Intensitäten bedeuten dementsprechend eine Verschiebung des Spektrums hin zu niedrigeren Harmonischenordnungen und eine maximale Erzeugungseffizienz für $q < 47$. Vergleichbar mit der Druckabhängigkeit bilden die theoretischen Spektren (Abb. 4.11a) die experimentell beobachteten Trends - optimale mittlere Intensität im Bereich der 49. bis 69. Harmonischen sowie die Verschiebung des Cut-offs in Abhängigkeit der Intensität - sehr gut ab; sie weichen allerdings für die niedrigen Harmonischen und in den relativen Signalstärken von den gemessenen Daten ab. Gründe dafür können in der differierenden Mediumlänge (Experiment: 3 mm; Theorie: 2 mm) sowie in der Fokuslage relativ zum Target mit den dadurch veränderten Intensitätsverhältnissen liegen. Zudem spielen bei kleinen Blendendurchmessern zunehmend Beugungseffekte eine Rolle, die das ideal gaußförmige Intensitätsprofil modulieren [22].

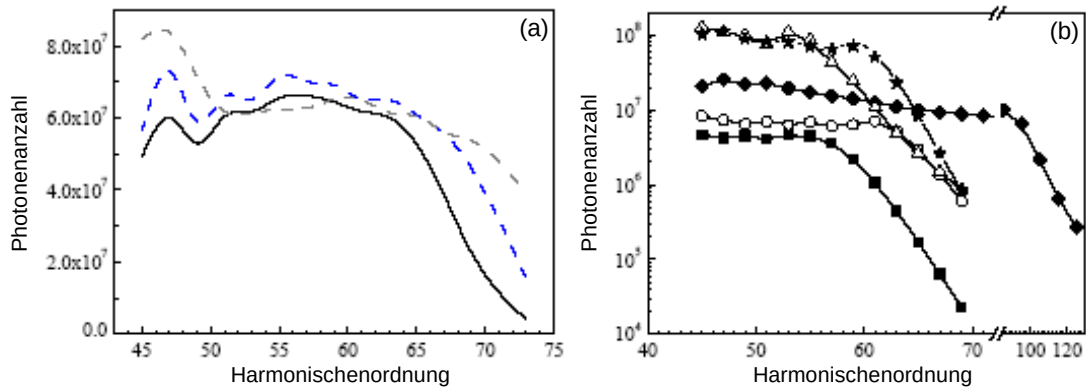


Abbildung 4.11: (a) Harmonischenspektren berechnet für eine Spitzenintensität im Vakuum von $8 \cdot 10^{14}\,\mathrm{W/cm^2}$ (schwarze durchgezogene Linie), $1 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$ (blau gestrichelte Kurve) und $2 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$ (grau gestrichelte Kurve). Der Neon-Gasdruck beträgt 110 mbar und die Mediumlänge 2 mm. (b) Laserparameter wie in Abb. 4.9, Gasdruck 210 mbar. Ausgefüllte Rechtecke: Simulationsergebnisse unter Berücksichtigung aller Dispersionseffekte. Leere Kreise: Ohne Brechung der Fundamentalen. Ausgefüllte Diamanten: Ohne Elektronendispersion. Leere Dreiecke: Ohne atomare Dispersion und Absorption der Harmonischen. Ausgefüllte Sterne: Ohne Absorption der Harmonischenstrahlung (aus [145]).

In den numerischen Rechnungen können die einzelnen Beiträge zur Phasenanpassungsbedingung ausgeschaltet werden, so dass man deren Einfluss genauer untersuchen kann (Abb. 4.11b). Hieran wird deutlich, dass im Plateau-Bereich vor allem die Absorption die Harmonischeneffizienz begrenzt, weil bei deren Nichtberücksichtigung die Photonenanzahl um mehr als eine Größenordnung zunimmt (ausgefüllte Sterne). Die Lage des Cut-offs ist dagegen im Wesentlichen durch die Elektronendispersion bestimmt (ausgefüllte Diamanten), die vor allem für die hohen Harmonischenordnungen ($q > 57$) relevant wird. Die Defokussierung der Fundamentalen aufgrund des veränderten Brechungsindex im ionisierten Medium spielt dafür ebenfalls eine Rolle, wohingegen sie die Erzeugungseffizienz im Plateau-Bereich nur wenig beeinträchtigt (leere Kreise). Im Bereich der 61. Harmonischen wird die negative Elektronendispersion durch die positive atomare Dispersion kompensiert, so dass hier die absorptionslimitierte Emission zustandekommt (leere Dreiecke im Vergleich zu den ausgefüllten Sternen). Zum Vergleich haben Schnürer *et al.* in einem ähnlichen Aufbau mit Interaktionslängen von ebenfalls 2 bis 3 mm bei etwas kleineren Intensitäten von $5 \cdot 10^{14}\,\mathrm{W/cm^2}$, aber dafür deutlich höheren Drücken von etwa 400 mbar die besten Resultate erzielt [147].

Um die Erzeugungseffizienz der Harmonischenordnungen 49 bis 59, die innerhalb des Reflektivitätsbereichs des Gradienten-Multilagenspiegels liegen, jeweils kontrolliert maximieren zu können, wurden Messreihen unter Variation verschiedener Parameter - Kompressoreinstellung und damit Pulsdauer und Chirp der Fundamentalen, Laserintensität in Form der Blendenöffnung sowie Targetdruck - durchgeführt (Abb. 4.12 und 4.13). Die im Rahmen des Verfahrbereichs optimierte Position des Targetröhrchens, die Mediumlänge von 3 mm sowie die übrigen Laserparameter wurden bei der Messung nicht verändert. Die

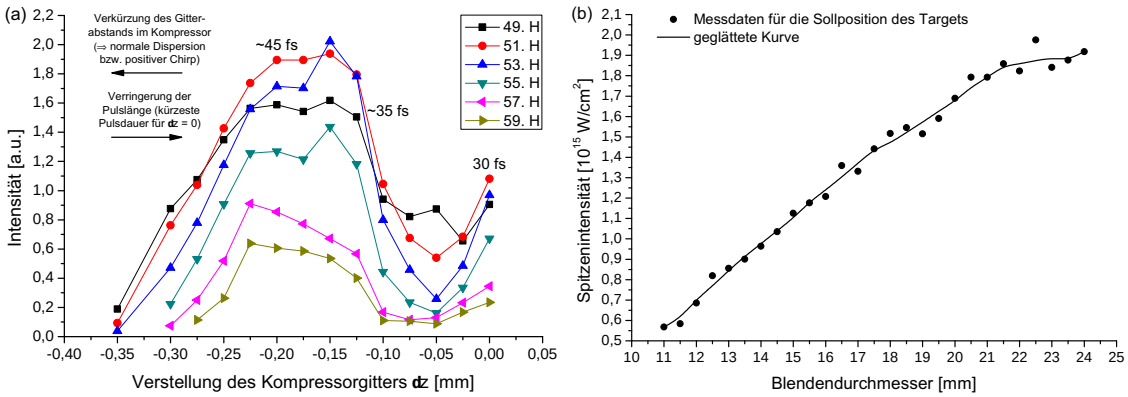


Abbildung 4.12: (a) Abhängigkeit der Intensität der 49. bis 59. Harmonischen von der Kompressoreinstellung. (b) Spitzenintensität im Targetbereich in Abhängigkeit von dem Durchmesser der Laserblendenöffnung.

Abhängigkeit von dem Gitterabstand im Pulskompressor ist in etwa gleich für die ausgewählten Harmonischen und erreicht ein Optimum für eine Verkürzung dieses Abstands um $-0,15\,\mathrm{mm}$ (49. bis 55. HH) bis $-0,225\,\mathrm{mm}$ (57. und 59. HH). Die damit verbundene Einführung eines positiven Chirps der Fundamentalen dient nach Ref. [60,62,64] zur Kompensation des durch die Laserpulsform induzierten negativen HH-Chirps (siehe Gleichung 2.33), der hier gegenüber dem positiven Chirp aufgrund der Selbstphasenmodulation, der erst für höhere Intensitäten relevant wird, dominiert. Die Einführung einer Blende im Laserstrahlengang führt zum einen zur Reduktion der Laserleistung gemäß Gleichung 2.10, zum anderen bewirkt sie eine Vergrößerung der Fokusfläche, die in Abhängigkeit des Blendendurchmessers an der Sollposition[1] des Targets gemessen wurde. Da der Fokus eine elliptische Form aufwies, wurde die Fläche mittels $\pi W_x W_y$ bestimmt und damit die Spitzenintensität gemäß Gleichung 2.11 berechnet. Die Lage des Fokus konnte aufgrund der Messungenauigkeiten[2] nur mit der Unsicherheit einer Rayleigh-Länge ermittelt werden, so dass die real im Target vorherrschenden Intensitäten im Vergleich zu den in Abbildung 4.12b angegebenen um maximal einen Faktor 2 abweichen können. Der für Intensitäten größer als $2 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$ nötige negative Chirp für maximales Harmonischensignal zur Kompensation der Selbstphasenmodulation [64] deutet aber auf die Richtigkeit des angegebenen Intensitätsintervalls hin.

[1] Die Sollposition entspricht dem für die Konstruktion der Beamline verwendeten Abstand des Targets von der Fokussierlinse von 1 m.

[2] Einerseits waren aufgrund des Astigmatismus die minimalen Strahldurchmesser in horizontaler und vertikaler Richtung um mehr als zwei Millimeter versetzt und mit Messunsicherheiten in der Position von $\pm 0,9\,\mathrm{mm}$ behaftet; andererseits wurden die Messungen der Fokusgröße an Luft und mit abgeschwächtem Laserstrahl durchgeführt, was die Fokusposition ebenfalls beeinflusst.

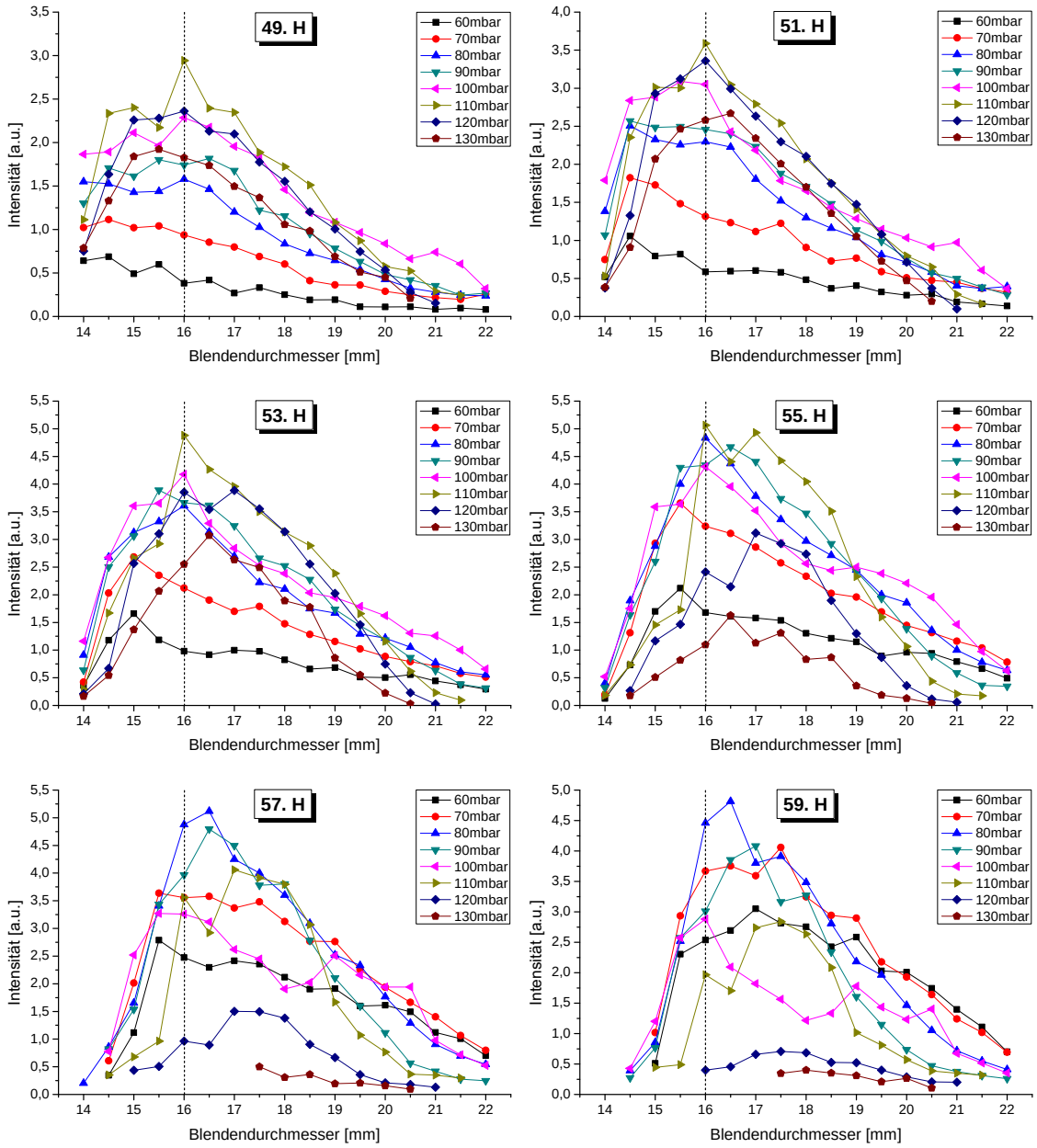


Abbildung 4.13: Abhängigkeit der Intensität der 49. bis 59. Harmonischen vom Targetdruck und vom Durchmesser der Blendenöffnung.

In Bezug auf die Variation der Laserintensität zeigen die betrachteten Harmonischen ebenfalls generell ein gleiches Verhalten: Es gibt eine optimale Intensität von etwa 1,2 bis $1,3 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$, die sich für die höheren Harmonischen in Richtung größerer Werte verschiebt (vergleiche die Lage des Maximums relativ zu der als Orientierung dienenden, gestrichelten vertikalen Linie in Abb. 4.13). Bei der Druckabhängigkeit erkennt man einen gegenläufigen Trend, der im Einklang mit den von Altucci *et al.* mit einer gepulsten Gasdüse gemachten Beobachtungen steht [148]: Für die niedrigeren Harmonischen ($q < 55$) sind höhere Targetdrücke von etwa 110 mbar optimal, wohingegen für die höheren Harmonischen ($q > 55$) das Optimum bei etwa 80 mbar liegt. Die Autoren folgern außerdem

aus ihren Messdaten, dass sich für eine bestimmte Harmonischenordnung der optimale Gasdruck mit steigender Laserintensität erhöht. Diese Tendenz lässt sich lediglich für die dort verwendeten Intensitäten bis etwa $1,5 \cdot 10^{15}\,\mathrm{W/cm^2}$ bestätigen, kehrt sich danach aber wieder um.

Weil mit dem nicht kalibrierten MCP-Phosphorschirm-Detektor nur relative Harmonischenintensitäten gemessen werden können, wurde für eine Abschätzung des Photonenflusses die Röntgen-CCD-Kamera in der Harmonischen-Beamline hinter dem Multilagenspiegel eingebaut. Damit konnte unter Berücksichtigung der theoretischen Transmissions- bzw. Reflexionswerte der Beamline-Komponenten aus Kapitel 3.3.2 ein Wert von ca. $8 \cdot 10^4$ erzeugten Photonen pro Laserpuls und 1 mrad Divergenz in der 57. Harmonischen ermittelt werden. Dieser Photonenfluss ist höher oder vergleichbar mit den an anderen Hohe-Harmonische-Quellen gemessenen Werten [6, 35, 149, 150]. Höhere Photonenzahlen werden in experimentellen Aufbauten mit längeren Gaszellen und größeren Brennweiten der fokussierenden Optik erzielt, wofür jedoch auch eine höhere Laserleistung notwendig ist [59, 151].

4.3.3 Fokussierbarkeit

Neben der Optimierung des Strahlprofils und der Erzielung maximaler Photonenzahlen im Transmissionsbereich der HHG-Beamline muss die Harmonischenstrahlung für die angestrebte Untersuchung von Mikrostrukturen auch auf eine dementsprechend kleine Fläche fokussiert werden.

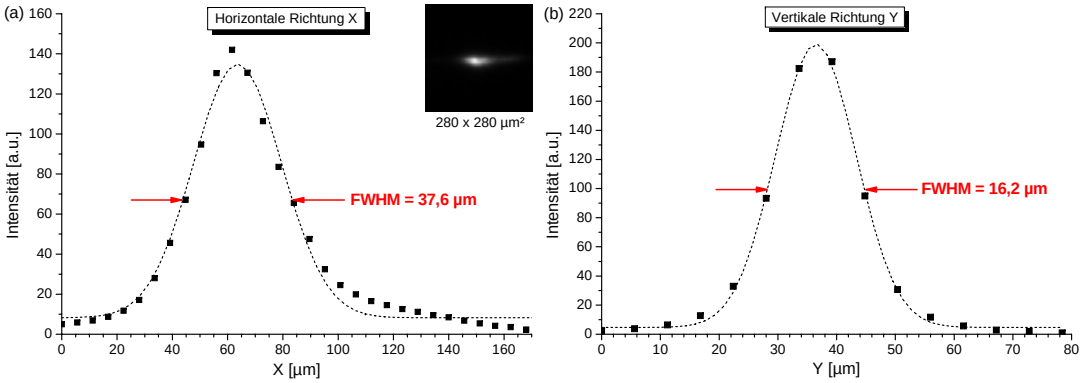


Abbildung 4.14: Abmessungen des vom Ellipsoidspiegel erzeugten Spots auf dem phosphorbeschichteten CCD-Chip in (a) horizontaler und (b) vertikaler Richtung. Die gestrichelte Linie repräsentiert jeweils eine an die Messpunkte angefittete Gauß-Funktion. Kleines Bild: HH-Fokus.

Deshalb wurde der Fokus des Ellipsoidspiegels bereits beim Betrieb der Harmonischenquelle mit Argon bei Photonenenergien um 40 eV herum charakterisiert. Eine CCD-Kamera mit einem phosphorbeschichteten Chip wurde an der Sollposition der Proben platziert und direkt im Vakuum betrieben, wobei eine ungeschirmte Multipin-Vakuumdurchführung zur Signalübermittlung über den FireWire-Anschluss der Kamera ausreichte. Nach Justage des Ellipsoidspiegels konnte damit eine minimale Spotgröße von 37,6 µm

FWHM in horizontaler bzw. $16,2\,\mu m$ FWHM in vertikaler Richtung nachgewiesen werden (siehe Abb. 4.14). Obwohl die Fehler der aus dem Gauß-Fit erhaltenen Strahlbreite in horizontaler Richtung lediglich $\pm 1,1\,\mu m$ und in vertikaler $\pm 0,3\,\mu m$ betragen, sind die Messunsicherheiten aufgrund der Korngröße des Phosphors (der Hersteller gibt eine minimale durchschnittliche Korngröße von $1\,\mu m$ an) sowie der Pixelgröße der CCD-Kamera von $5,6 \times 5,6\,\mu m^2$ größer. Da die Fluoreszenzstrahlung in einen Raumwinkel von 4π abgestrahlt wird und zudem Streuung an benachbarten Molekülen stattfindet, wird die eigentliche Spotgröße mit dieser Nachweismethode überschätzt.

Zur exakten Positionierung des Fokus vor dem Spektrometer, das für die Kameramessungen aus Platzgründen ausgebaut werden musste, diente das Photoelektronensignal von einem $10\,\mu m$ dünnen Wolfram-Draht, der in Form eines Fadenkreuzes auf einem Probenhalter aufgeklebt wurde (Lichtmikroskopbild in Abb. 4.15b). Die gekreuzten Drähte wurden dann mit Hilfe des In-Vakuum-Mikroskops vor dem Elektronenspektrometer positioniert (Abb. 4.15c) und die Anzahl der vom Draht emittierten Photoelektronen durch Justage des HH-Strahls maximiert. Ein schrittweises Verfahren des Drahtes in vertikaler Richtung mit einer Aufzeichnung des maximalen Elektronensignals (Abb. 4.15a) bestätigt mit einer Kantenbreite von $10\,\mu m$ (10 % bis 90 %) im Rahmen der Messgenauigkeit die mit Hilfe der CCD-Kamera ermittelte Fokusgröße.[3] Le Déroff *et al.* haben mit Xenon als Erzeugungsmedium bei Harmonischenenergien im Bereich von 20 eV und bei Fokussierung des Strahls mit Hilfe eines sphärischen Multilagenspiegels ebenfalls Fokusgrößen von $10\,\mu m$ gemessen [152]. Von Schnürer *et al.* wurden bei 90 eV (Targetgas Neon) sowohl bei Verwendung eines sphärischen Multilagenspiegels als auch einer Zonenplatte Fokusgrößen von 1 bis $2\,\mu m$ nachgewiesen [153]. Die in den beiden genannten Referenzen angewendete Fokusvermessung mittels einer in den Strahl fahrbaren, scharfen Kante liefert lediglich Aussagen über die Intensitätsverteilung in vertikaler bzw. horizontaler Richtung in der Fokalebene, sagt jedoch im Gegensatz zu abbildenden Verfahren nichts aus über die genaue Form des Strahlprofils. Kazamias *et al.* haben deshalb die von einem Cer-dotierten YAG-Kristall bei Bestrahlung mit dem HH-Licht emittierte Fluoreszenz im sichtbaren Spektralbereich detektiert und so den Fokus eines Toroidspiegels abgebildet, dessen Form stark von Aberrationen gekennzeichnet ist [154, 155]. Für die Anwendung dieser Detektionsmethode sind jedoch die dort erreichten hohen Photonenflüsse von $3,5 \cdot 10^{10}$ Photonen pro Puls für das gesamte Harmonischenspektrum und mit Argon als Erzeugungsmedium notwendig. Im Rahmen dieser Arbeit wurde ebenfalls ein Cer:YAG-Schirm auf einem Probenhalter in Kombination mit dem In-Vakuum-Mikroskop eingesetzt, um die Limitierung in der Auflösung aufgrund der Pixelgröße des phosphorbeschichteten CCD-Chips zu umgehen. Es konnte aber aufgrund der kleinen Photonenzahlen trotz gekühlter CCD-Kamera und Belichtungszeiten von bis zu 15 Minuten kein HH-induziertes Fluoreszenzlicht detektiert

[3] Diese Technik (engl. *knife edge technique*) wird ebenfalls zur Fokuscharakterisierung angewendet, liefert aber nur unter der Annahme eines genau horizontal gespannten Drahtes, eines gaußförmigen Spots sowie bei Fokusgrößen kleiner als der Drahtdurchmesser genaue Ergebnisse.

werden.

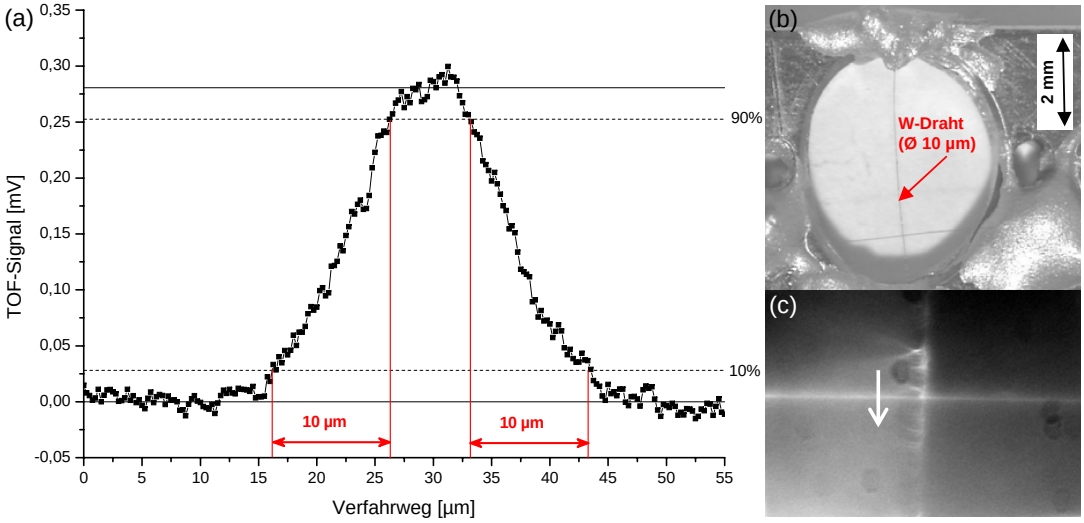


Abbildung 4.15: (a) Elektronensignal in Abhängigkeit des Verfahrwegs in vertikaler Richtung. (b) Mikroskopaufnahme des Halters mit dem aufgeklebten Fadenkreuz. (c) Abbildung des Fadenkreuzes mit Hilfe des In-Vakuum-Mikroskops zur Positionierung vor dem TOF. Der weiße Pfeil zeigt die Scanrichtung zur Aufnahme der Messkurve.

4.4 Photoemissionsspektroskopie

Nach der Charakterisierung und Optimierung der XUV-Quelle folgen in diesem Kapitel die Messergebnisse der Spektroskopieexperimente, die in der UHV-Apparatur am Ende der HHG-Beamline durchgeführt wurden. Vor der Diskussion der Photoemissionsspektren ausgewählter Festkörperoberflächen werden zunächst die Tests des Probenscannertisches mit UV-Strahlung erzeugt durch Frequenzverdreifachung des 800 nm-Laserlichts sowie die Messungen an Xenon zur Kalibrierung des Flugzeitspektrometers vorgestellt.

Test des Probenscannertisches

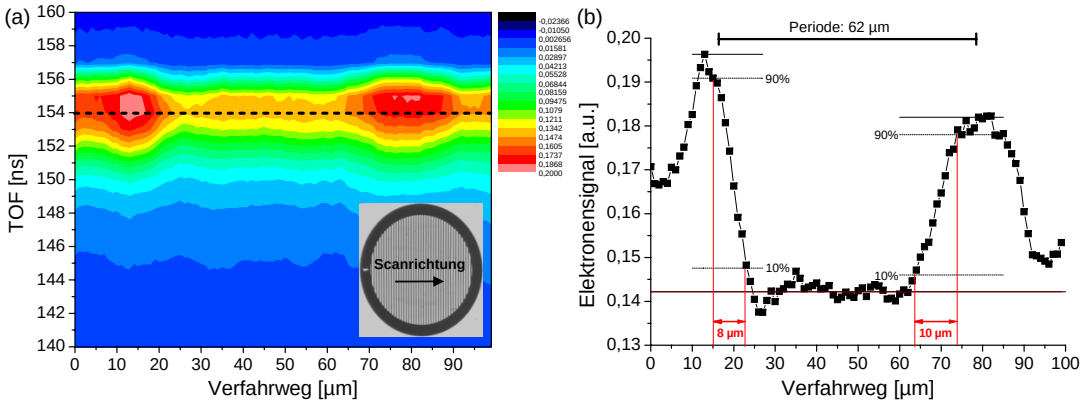


Abbildung 4.16: (a) TOF-Spektren aufgenommen bei unterschiedlichen Positionen auf dem Cu-Netzchen. Das kleine Bild zeigt eine Mikroskopaufnahme des Netzchens und die Verfahrrichtung senkrecht zu den Stegen. (b) Elektronensignal bei festem Flugzeitwert in Abhängigkeit vom Verfahrweg (Verlauf entlang der gestrichelten Linie im linken Bild).

Mit Hilfe eines Cu-Netzchens mit parallelen Stegen im Abstand von 62 µm als Testobjekt (G2016C der Firma Plano) wurde zunächst die Eignung des Probenscannertisches für die ortsaufgelöste Photoemissionsspektroskopie nachgewiesen. Hierbei diente die dritte Harmonische des Lasersystems ($\lambda = 267$ nm bzw. $E = 4,65$ eV) als anregende Strahlung, die mit einer für den UV-Bereich geeigneten Linse (*TECHSPEC UV Fused Silica PCX Lens* der Firma Edmund Optics) auf das Netzchen fokussiert wurde. Aufgrund der in einem BBO-Kristall [156] generierten Pulsenergien von etwa 2 µJ und damit Intensitäten im Bereich von 10^{13} W/cm^2 ist zwar eine hohe Elektronenausbeute zu erwarten, weil die Kupfer-Austrittsarbeit aber 4,39 eV beträgt [157], werden lediglich Elektronen nahe der Fermi-Kante mit geringen kinetischen Energien freigesetzt und müssen daher durch eine an das Netzchen angelegte Spannung zur TOF-Öffnung hin beschleunigt werden. Verfährt man das Netzchen in 1 µm-Schritten senkrecht zu den Stegen, so erhält man in Abhängigkeit von der Position deutlich unterschiedliche Signalstärken im Spektrometer, die mit der Periode der untersuchten Struktur korrelieren. Da die zwischen den Stegen durch das Netzchen transmittierte Strahlung in einer Entfernung von einigen Millimetern auf den Halter trifft und dort Elektronen auslöst, lässt sich auch an diesen Positionen ein Elektronensignal

detektieren. Der Abstand der Linse zum Testobjekt wurde variiert und anhand der bei den unterschiedlichen Positionen ermittelten Kantenbreiten der kleinste Spotdurchmesser auf das Netzchen justiert (dargestellt in Abb. 4.16). Die minimale Kantenbreite um die 10 µm beim Übergang vom Steg zum Zwischenraum kann mit einer Fokusgröße von mehreren Mikrometern[4] sowie den nicht perfekt senkrecht zur Verfahrrichtung ausgerichteten Stegen erklärt werden.

Xenon

Um das Spektrometer hinsichtlich der Flugzeit-Energie-Umrechnung zu kalibrieren (siehe S. 56ff), wurde die in Neon erzeugte und vom Multilagenspiegel reflektierte Harmonischenstrahlung mit dem Ellipsoidspiegel auf einen Xenon-Gasstrahl fokussiert. Die Xe $N_{4,5}OO$ Auger-Elektronen mit von der Anregungsenergie unabhängigen kinetischen Energien im Bereich von 8 bis 36 eV wurden als Referenz zur Anpassung der Energieskala genutzt. Da aufgrund der geringen Photonenflüsse der XUV-Laborquelle im Mittel weniger als ein Elektron pro Laserschuss nachgewiesen werden konnte, wurde das Spektrometer im Zählmodus betrieben: Das an den Detektor angeschlossene Oszilloskop wird dabei auf ein vom Laserpuls stammendes Photodiodensignal getriggert und misst die Zeit bis zu dem von einem Elektron ausgelösten Signalpuls. Die ermittelten Zeiten werden in einem Histogramm aufgetragen, wobei die Zeit- und damit Energieauflösung neben der intrinsischen Signalverbreiterung des Spektrometers nun auch von der Kanalbreite im Histogramm abhängt. Eine Verkleinerung der Kanalbreite reduziert jedoch die Anzahl N der pro Zeitintervall detektierten Elektronen, so dass der statistische Fehler $\Delta N = \sqrt{N}$ hier die Messgenauigkeit verringert und ein Kompromiss zwischen der Energieauflösung (Unsicherheit in der energetischen Position der Peaks) und der Signalstärke (statistischer Fehler) gefunden werden muss. Durch den Vergleich des Flugzeithistogramms mit den von Werme, Bergmark und Siegbahn [159] gemessenen kinetischen Energien und relativen Peakhöhen der Xe $N_{4,5}OO$ Auger-Linien konnten die signifikanten Peaks hinsichtlich ihrer energetischen Position zugeordnet und durch Anpassen der Funktion 3.13 die im Folgenden für die Flugzeit-Energie-Umrechnung ns → eV verwendeten Parameter $C = 621,12\,\sqrt{\text{eV}}\cdot\text{ns}$, $t_0 = -43,25\,\text{ns}$ und $U = 2,33\,\text{eV}$ bestimmt werden. Für die hier eingestellte Kanalbreite von $0,5\,\text{ns}$ ergibt sich mit den genannten TOF-Parametern eine Unsicherheit in der Energie $E_0 \pm \Delta E/2$ um die Mittenenergie $E_0 = 10\,\text{eV}$ (20 eV, 30 eV, 40 eV) von $\Delta E = 0,07\,\text{eV}$ (0,17 eV, 0,296 eV, 0,443 eV). Bei den Messungen am Gas ist auch die intrinsische Signalverbreiterung des Spektrometers aufgrund des vergrößerten Quellvolumens der emittierten Elektronen im Vergleich zu den Messungen an Oberflächen erhöht, so dass sich für das Auger-Spektrum in Abbildung 4.17 insgesamt eine Energieauflösung von $0,4 \leq \Delta E \leq 0,8\,\text{eV}$ ergibt. Aus

[4] In der Simulation mit ZEMAX [158] ergibt sich für eine optimal justierte Fokussierlinse ein beugungsbegrenzter Fokus mit einem Durchmesser von $2,9\,\mu\text{m}$. Hinzu kommen aber die laser- und justagebedingten Verbreiterungen ($M^2 \approx 2$, Einfluss der Frequenzkonversion auf das Strahlprofil, Strahl trifft evtl. leicht schräg auf die Linse).

der Lage der Spin-Bahn-aufgespaltenen 4d-Linie lässt sich mit den bekannten Bindungsenergien $E_{\text{bind}}(4d_{3/2}) = 69,5\,\text{eV}$ und $E_{\text{bind}}(4d_{5/2}) = 67,5\,\text{eV}$ [38] eine Anregungsenergie von $88,26\,\text{eV}$ bestimmen, wobei die Ungenauigkeit dieses Wertes aufgrund der Güte des Fits der Kalibrierkurve an die energetischen Positionen der Auger-Linien (der Wert für das Bestimmtheitsmaß R^2 liegt mit 0.99996 nahezu bei dem idealen Wert von 1) durch die Energieauflösung gegeben ist. Die gemessene Anregungsenergie entspricht der 57. Harmonischen des Laserfeldes ($E_{57.\,\text{HH}} = 88,34\,\text{eV}$ für $\lambda_0 = 800\,\text{nm}$), zumal die Zentralwellenlänge des Laserspektrums je nach Justage des Verstärkers um wenige Nanometer variieren kann. Das Verhältnis der Peakhöhen der zwei Spin-Bahn-Komponenten der 4d-Linie von ca. 1,3 stimmt sehr gut mit den von Ausmees *et al.* bei der hier vorliegenden Photonenenergie theoretisch und experimentell ermittelten Werten überein [160].

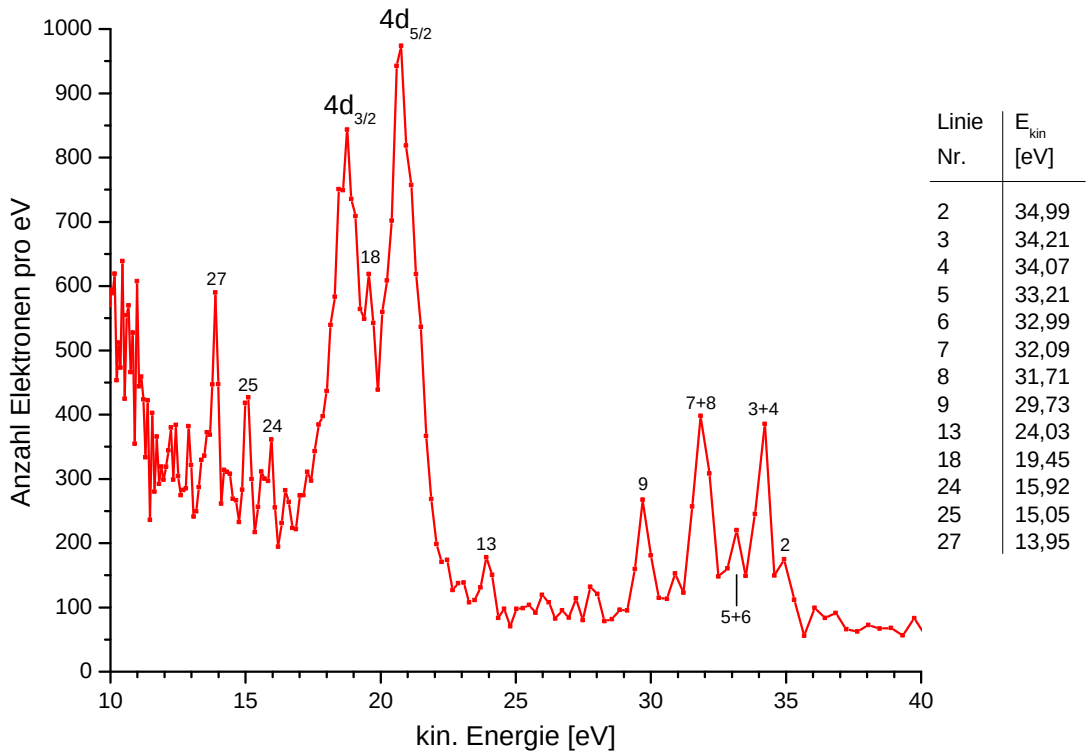


Abbildung 4.17: Photoemissionsspektrum von Xenon. Die Bezeichnung der Auger-Linien mit den zugehörigen kinetischen Energien ist übernommen von Ref. [159].

GaAs- und Silizium-Oberflächen

Nach der Kalibrierung des Detektors mit Hilfe des Xenon-Spektrums wurden bei der gleichen Photonenenergie Messungen an Festkörperoberflächen durchgeführt. Die als Testobjekte verwendeten GaAs- und Silizium-Wafer wurden dazu jeweils durch den Beschuss mit 1,5 keV-Argon-Ionen unter einem Winkel von 25° zur Oberflächennormalen gereinigt. Während dieses Sputterprozesses herrschte ein Druck von $5 \cdot 10^{-6}$ mbar in der Präparationskammer, der sich nach dem Ausschalten der Ionenkanone und vor dem Einschleusen der

Probe in die Messkammer innerhalb weniger Minuten um mehr als zwei Größenordnungen verringerte. Ein Heizen der Proben zur Glättung der Oberfläche und zum Ausheilen von Kristalldefekten war im Rahmen dieser ersten Proof-of-principle-Messungen mit der aufgebauten Apparatur nicht möglich. Bei den Photoemissionsmessungen stieg der Druck in der Experimentierkammer gegenüber dem Basisdruck von $6 \cdot 10^{-10}$ mbar durch den hohen Neon-Partialdruck in der HHG-Beamline sowie durch das Ausgasen der Schrittmotoren beim Verfahren um etwas weniger als eine Größenordnung auf etwa $2 \cdot 10^{-9}$ mbar an.

Das bezüglich der TOF-Transmission korrigierte Photoemissionsspektrum einer GaAs(100)-Oberfläche mit den charakteristischen Peaks der Ga 3d- und As 3d-Elektronen ist in Abbildung 4.18 gezeigt. Anhand der Ga 3d-Linie lässt sich der Grad der Monochromasie der vom Multilagenspiegel reflektierten Strahlung verdeutlichen, da neben der Hauptlinie geringe Anteile der nächsthöheren bzw. -niedrigeren Harmonischen von 4–8 % bzw. 8–11 % je nach Untergrundabzug erkennbar sind. Die Peaks setzen sich im Wesentlichen aus den zwei Spin-Bahn-Komponenten $3d_{5/2}$ und $3d_{3/2}$ zusammen, wie eine genauere Analyse der As 3d-Linie zeigt. Die Fitprozedur wurde mit dem Programm FitXPS [161] durchgeführt, das für die Einzelpeaks eine Faltung aus einer Doniach-Sunjic-Linienform mit einer Gauß-Funktion annimmt, wobei letztere der instrumentellen sowie Phononen-Verbreiterung der Linien Rechnung trägt. Nimmt man als Modell drei um den energetischen Abstand von $2\hbar\omega_0 = 3,1\,\mathrm{eV}$ verschobene Dubletts mit einer Spin-Bahn-Aufspaltung von $0,7\,\mathrm{eV}$, einem Peakhöhenverhältnis von 1,5 und einer Lorentz-Lebensdauerverbreiterung von $0,155\,\mathrm{eV}$ an (die Werte sind entnommen aus Ref. [162]) und passt deren Peakhöhen, die Breite der Gauß-Funktion, den Asymmetrieparameter sowie die absolute energetische Position der Peakstruktur als freie Parameter an die Messdaten an, so lässt sich das gemessene Spektrum unter Berücksichtigung eines polynomialen Untergrunds sehr gut reproduzieren. Die geringen Abweichungen der experimentellen Daten vom Modell sind neben den Messungenauigkeiten aufgrund der Zählstatistik und der Kalibrierung mit den Beiträgen von Oberflächenzuständen zu erklären [162–165], deren Entfaltung wegen der nicht genau bekannten Oberflächenrekonstruktion sowie eventuell vorhandener Adsorbate hier nicht vorgenommen werden konnte.

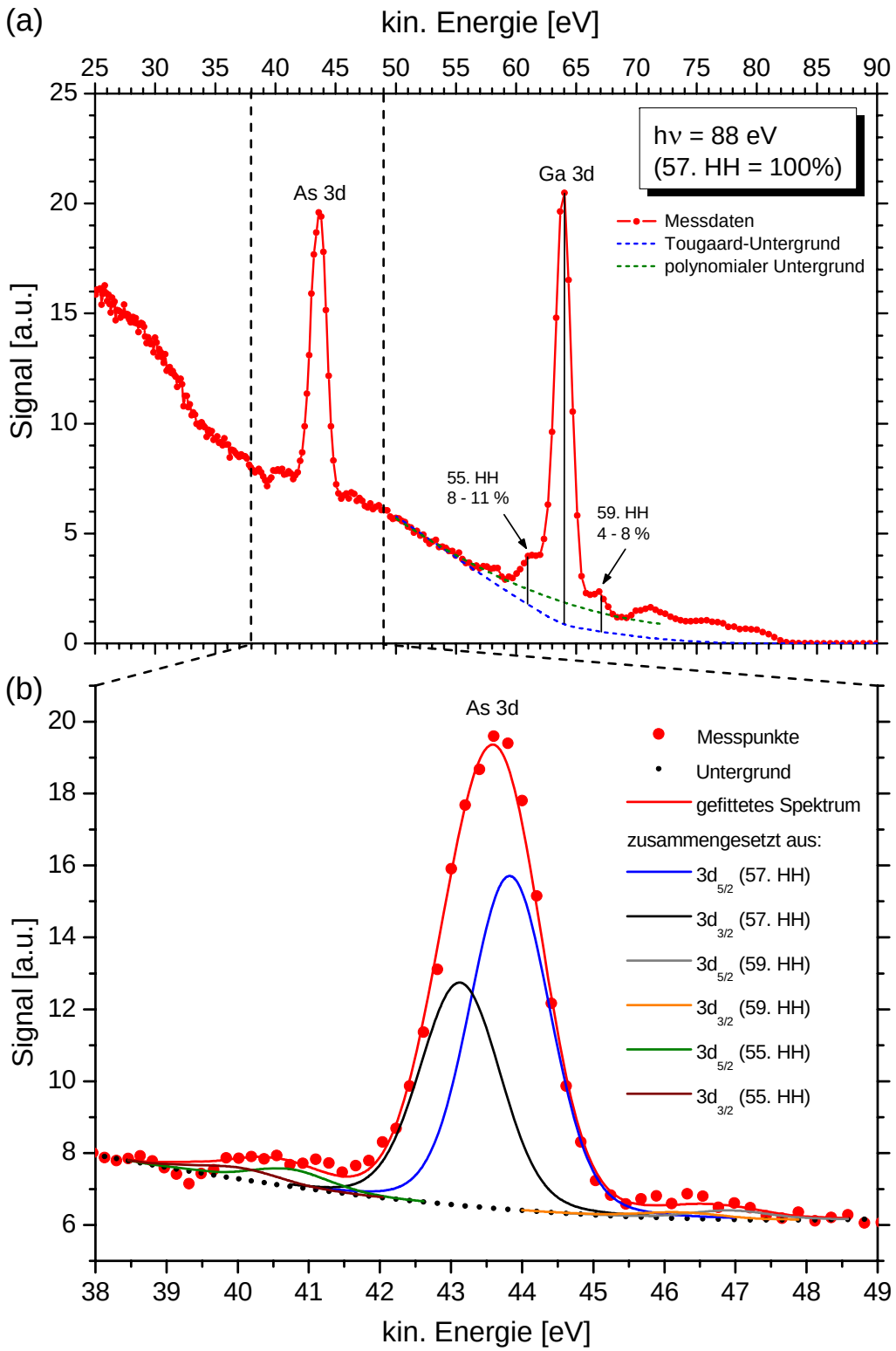


Abbildung 4.18: (a) Gesamtes Photoemissionsspektrum von GaAs (rot) nach 20 min sputtern. Der Tougaard-Untergrund (blau gestrichelt) ist über den Parameter B_1 an den Bereich 50 bis 56 eV auf der niederenergetischen Seite des Ga 3d-Peaks angepasst. Als alternative Untergrundfunktion ist ein Polynom 2. Grades an die Bereiche links und rechts der Peakstruktur angefittet (grün gestrichelt). (b) As 3d-Linie zusammengesetzt aus den sechs Einzelpeaks.

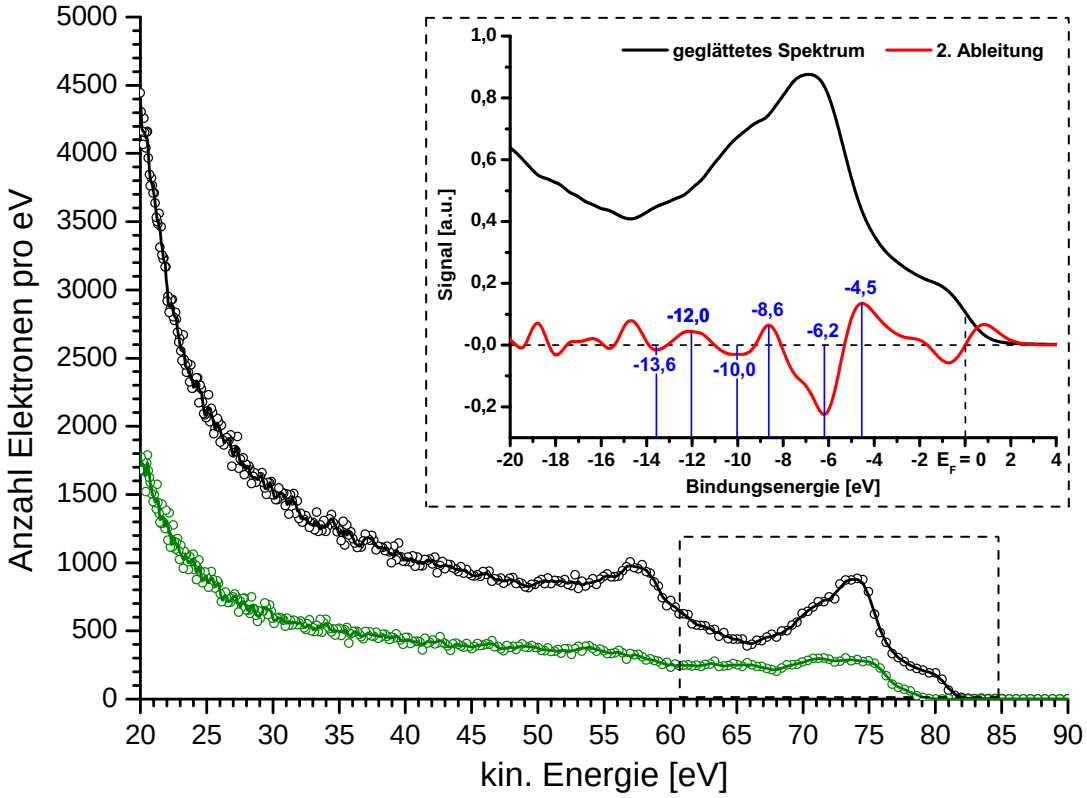


Abbildung 4.19: Photoemissionsspektrum eines mechanisch und chemisch gereinigten Silizium-Wafers (olive Messpunkte und geglättete Kurve). Dieselbe Probe nach 1 Std. Sputtern mit 1,5 keV-Argon-Ionen (schwarz). Die kleine Grafik zeigt vergrößert das Valenzbandspektrum der gesputterten Silizium-Oberfläche. Der zugehörige Ausschnitt im Gesamtspektrum ist durch den schwarz gestrichelten Kasten gekennzeichnet. Mit Hilfe der zweiten Ableitung (rote Kurve) wurden die energetischen Positionen signifikanter Strukturen in der Zustandsdichte nahe der Fermi-Kante ermittelt (blau).

Als ein alternatives Substratmaterial wurde ein Silizium-Wafer verwendet, der nach einer chemischen und mechanischen Reinigung mit Aceton und Isopropanol im Ultraschallbad ins Vakuum transferiert wurde. Erst nach einer zusätzlichen Säuberung der Probenoberfläche mit Hilfe von Argon-Ionen treten die für Silizium charakteristischen Strukturen zutage, wie ein Vergleich der Spektren vor (oliv) und nach dem Sputtern (schwarz) in Abbildung 4.19 zeigt. Die durchgezogenen Linien erhält man durch eine Glättung der Messdaten (gleitender Durchschnitt über drei benachbarte Punkte). Im Gegensatz zum GaAs können die Rumpfelektronen mit minimal 99,42 bzw. 99,82 eV Bindungsenergie für das Si 2p-Dublett [38] mit den erreichbaren Anregungsenergien nicht freigesetzt werden, so dass im niederenergetischen Teil des Spektrums lediglich der strukturlose Sekundärelektronenuntergrund zu sehen ist. Dagegen ist im Bereich hoher kinetischer Energien deutlich das etwa 15 eV breite Valenzband und ca. 17 eV darunter die für Silizium charakteristische Satellitenstruktur aufgrund einer Plasmonenanregung zu erkennen (in Kongruenz zu den von Ley *et al.* [166] und Barr [167] gemessenen XPS-Spektren). Um die Substruktur des Valenzbandpeaks sichtbar zu machen, wurde die zweite Ableitung der geglätteten Mess-

kurve gebildet, bei der die erste Nullstelle auf der hochenergetischen Seite die Lage der Fermi-Kante markiert und die Maxima (Minima) in der Zustandsdichte als deutlich hervortretende negative (positive) Peaks erscheinen. Die energetischen Positionen hoher und niedriger Zustandsdichte stimmen dabei bis auf ein Maximum im Bereich von 2 bis 3 eV, das durch die stark ansteigende Flanke überdeckt wird, sehr gut mit den experimentellen und theoretischen Vergleichsdaten überein (siehe Tabelle 4.1 und Ref. [168]).

	hier	Exp.	Theorie 1	Theorie 2
X_4	?	-2,2	-2,6	-2,5
v^e	-4,5	-4,4	-5,1	-4,5
L_1	-6,2	-6,6	-7,1	-6,9
L_2'	-10,0	-9,2	-10,0	-9,6
Γ_1	-13,6	-14,7	-13,0	-11,8

Tabelle 4.1: Vergleich der nach den Symmetriepunkten in der Bandstruktur benannten, energetischen Positionen hoher Zustandsdichte X_4, L_1, L_2' und Γ_1 sowie der Lage des ersten Minimums v^e. Die experimentellen und theoretischen Referenzwerte sind entnommen aus [166].

Fe/GaAs und Fe/Si

In Abbildung 4.20 sind die Spektren der mit dem Elektronenstrahlverdampfer auf ein GaAs-Substrat sowie einen Silizium-Wafer aufgebrachten Eisenfilme zu sehen. Aufgrund der fehlenden in-situ Schichtdickemessung wurden für die Testexperimente mehrere Nanometer dicke Filme mit bulk-artigen Eigenschaften aufgebracht, so dass bei einer visuellen Inspektion der Proben die Eisenbedeckung sichtbar war. Da außerdem die Ga 3d-Linie nach der verwendeten Aufdampfzeit von 15 Minuten bei einem Druck von etwa $2 \cdot 10^{-8}$ mbar (bestimmt durch den restlichen Argon-Partialdruck nach dem Betrieb der Ionenkanone) im Spektrum nicht mehr zu detektieren ist, kann gemäß der Abschwächungskurven in Ref. [169] und [170] eine Schichtdicke von mindestens 30 Å gefolgert werden. An die Bereiche vor und nach den Peaks (für die Fe 3p-Linie die Untergrundbereiche 1 und 2, für die As 3d-Linie 2 und 3) ist jeweils separat eine Exponentialfunktion angepasst worden, die den vor allem in der Umgebung der Fe 3p-Linie bereits stark ansteigenden Sekundärelektronenuntergrund sehr gut beschreibt (gestrichelte Linien). Ein Signal-Untergrund-Verhältnis von 0,13 bei Fe/GaAs (das maximale Eisensignal ist mit dem blauen Pfeil gekennzeichnet) verdeutlicht den Nachteil der niedrigen Anregungsenergien.[5] Trotz der Oberflächenbedeckung mit Eisen ist bei diesem Spektrum der As 3d-Peak deutlich sichtbar, da eine Segregation der Arsen-Atome zur Oberfläche stattfindet, die dort unabhängig von der Präparationsmethode und Oberflächenrekonstruktion eine ca. 0,75 ML dünne Schicht bilden [171]. Für eine ausführliche Beschreibung der Eigenschaften dünner Eisenfilme auf GaAs(001) sei

[5] Der Photoionisationswirkungsquerschnitt der Fe 3p-Linie beträgt 0,62 Mbarn bei 90 eV Anregungsenergie (zum Vergleich: Ga 3d 8,36 Mbarn, As 3d 5,86 Mbarn, siehe [133]).

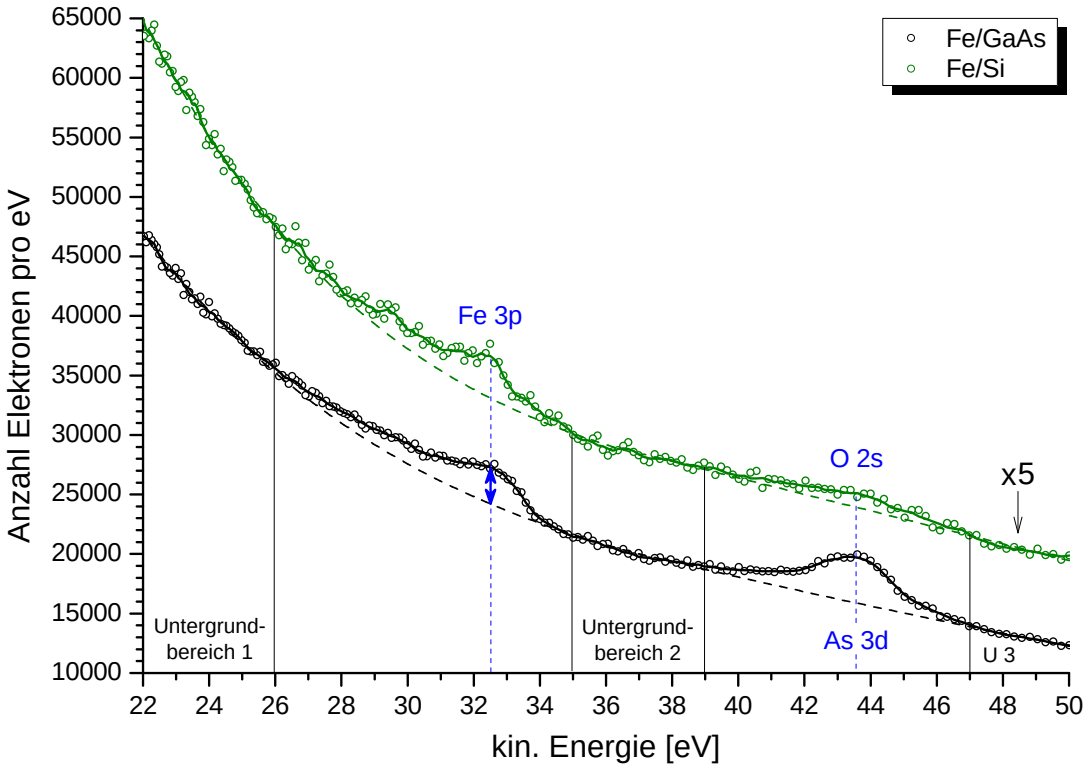


Abbildung 4.20: Relevanter Ausschnitt des Spektrums der auf ein GaAs- (schwarz) bzw. ein Silizium-Substrat (oliv) aufgedampften Eisenfilme. Die durchgezogenen Linien erhält man durch eine Glättung der Messdaten (gleitender Durchschnitt über 5 benachbarte Punkte), während die gestrichelten Kurven den durch das Anpassen einer Exponentialfunktion ermittelten Untergrund beschreiben. Das innerhalb einer kürzeren Messdauer aufgenommene Spektrum von Fe/Si wurde zur besseren Vergleichbarkeit mit dem Faktor 5 multipliziert.

auch auf den Übersichtsartikel von Wastlbauer und Bland [172] verwiesen. Außerdem ist dieser Peak von dem Beitrag der sich durch Oxidation an das Eisen anbindenden Sauerstoffatome überlagert, der jedoch maximal 35 % des Fe 3p-Peaks beträgt, wie das an Fe/Si gemessene Spektrum zeigt.[6]

[6]Die Bindungsenergie der O 2s-Elektronen beträgt 41, 6 eV und die der As 3d-Elektronen 41, 7 eV (siehe Ref. [38]).

4.5 MLDAD an der Fe 3p-Kante

Anhand des vorherigen Kapitels wird ersichtlich, dass mit dem vorgestellten Messaufbau die Photoemissionsspektroskopie an Festkörperoberflächen möglich ist. Im Folgenden geht es um den Nachweis einer magnetisierungsabhängigen Änderung des Photoelektronenspektrums am Modellsystem Fe/GaAs, da bei der Fe 3p-Linie gemäß Kapitel 2.5 ein magnetischer Dichroismus bei der Anregung mit linear polarisiertem XUV-Licht auftritt. Von Vorteil ist außerdem der benachbarte As 3d-Peak der nicht magnetisierbaren Arsen-Deckschicht, der als Referenz dienen kann. Eine Austauschwechselwirkung des Arsens mit den Fe-Atomen und ein sich daraus ergebendes Dichroismussignal lässt sich zwar nicht ausschließen, dieser Effekt ist aber deutlich geringer ausgeprägt als beim Eisen, wie die Messungen von Sirotti *et al.* an Schwefelatomen auf einer Fe(100)-Oberfläche zeigen [94].

Ein Messzyklus nach Einschleusen eines mit Eisen bedampften GaAs-Substrats in die Experimentierkammer bestand aus der remanenten Magnetisierung der Eisenschicht durch den Magnetfeldpuls[7], der Detektion der Photoelektronen über einen Zeitraum von 5 Minuten, der Umpolung der Stromrichtung durch die Spulen mit anschließender Magnetisierung der Probe in entgegengesetzter Richtung sowie einer erneuten 5-minütigen Aufnahme eines Flugzeithistogramms. Dieser Ablauf wurde bis zu einer gesamten Messdauer von etwa vier Stunden wiederholt, da die Hohe-Harmonische-Quelle dann nachjustiert werden musste, um ein ausreichendes Elektronensignal zu gewährleisten. Die Probe wurde vor der Fortsetzung der Messung in der Präparationskammer gereinigt und neu mit Eisen bedampft, um die Degradation der Probenoberfläche in Folge einer Oxidation oder der Anlagerung von Adsorbaten möglichst gering zu halten. Pronin *et al.* haben bei Raumtemperatur ultradünne Eisenfilme mit einem Elektronenstrahlverdampfer auf eine Silizium-Oberfläche aufgebracht und ab 8 ML Eisenbedeckung ein Dichroismussignal nachgewiesen [173], so dass die hier präparierten, mindestens 15 ML dicken Filme (eine Monolage entspricht etwa 2 Å [174]) zur Beobachtung des Effekts geeignet sind. Das Spektrum der XUV-Laborquelle wurde für alle Messungen hinsichtlich eines maximalen Photonenflusses in der 57. Harmonischen optimiert, was einer Anregungsenergie von 88 eV entspricht.

[7] Bei dem 1 ms FWHM andauernden Puls betrug der Maximalwert der magnetischen Flussdichte 20 mT (siehe Abb. 3.18).

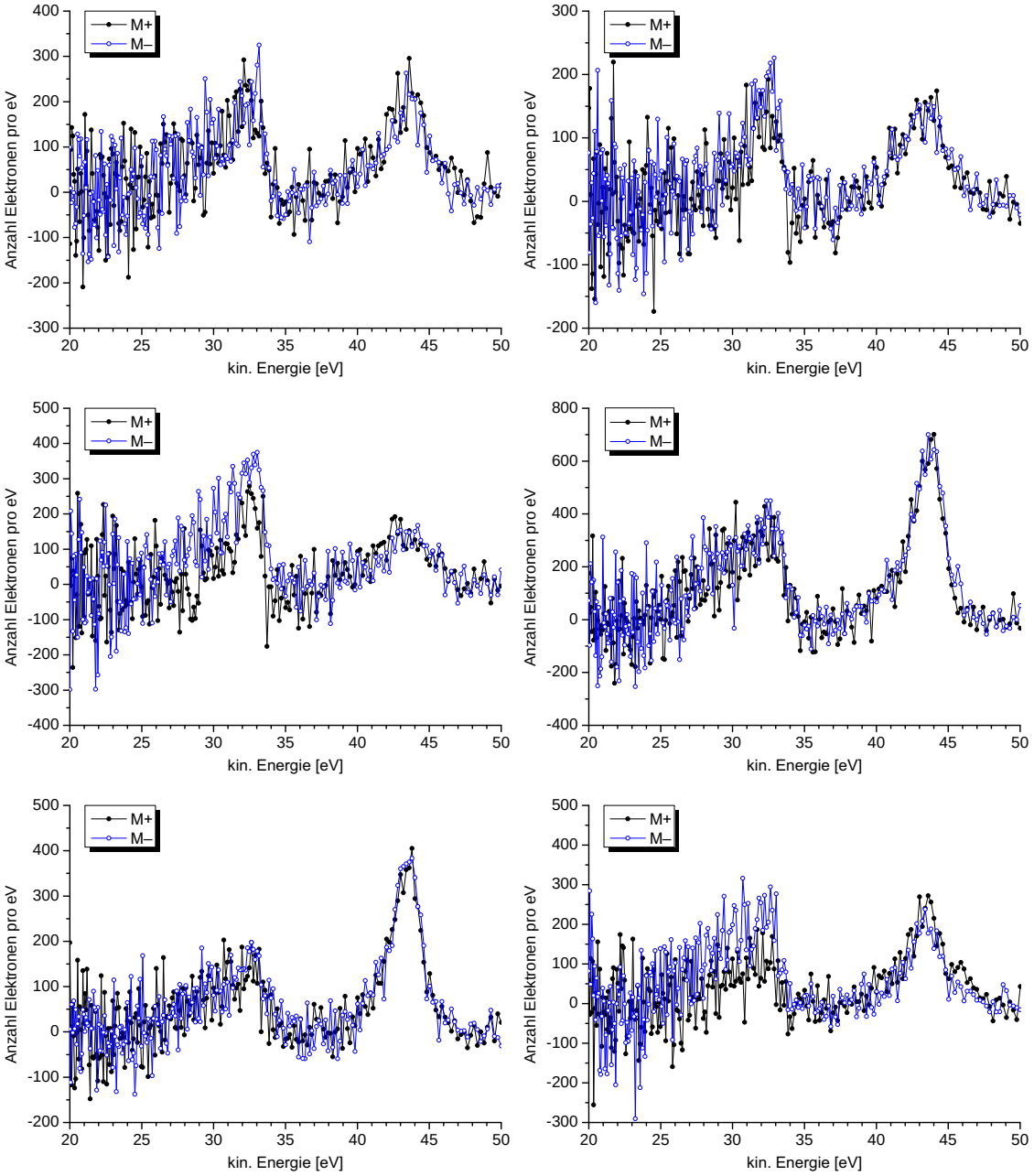


Abbildung 4.21: Typische Einzelspektren gemessen an Fe/GaAs nach Untergrundabzug. Die Präparation der Eisenschichten erfolgte jeweils mit gleichen Aufdampfparametern (vgl. Kapitel 4.4), die Messungen wurden aber an unterschiedlichen Tagen und damit leicht variierenden Einstellungen der XUV-Laborquelle, an verschiedenen Probenpositionen und mit anderen GaAs-Substraten durchgeführt.

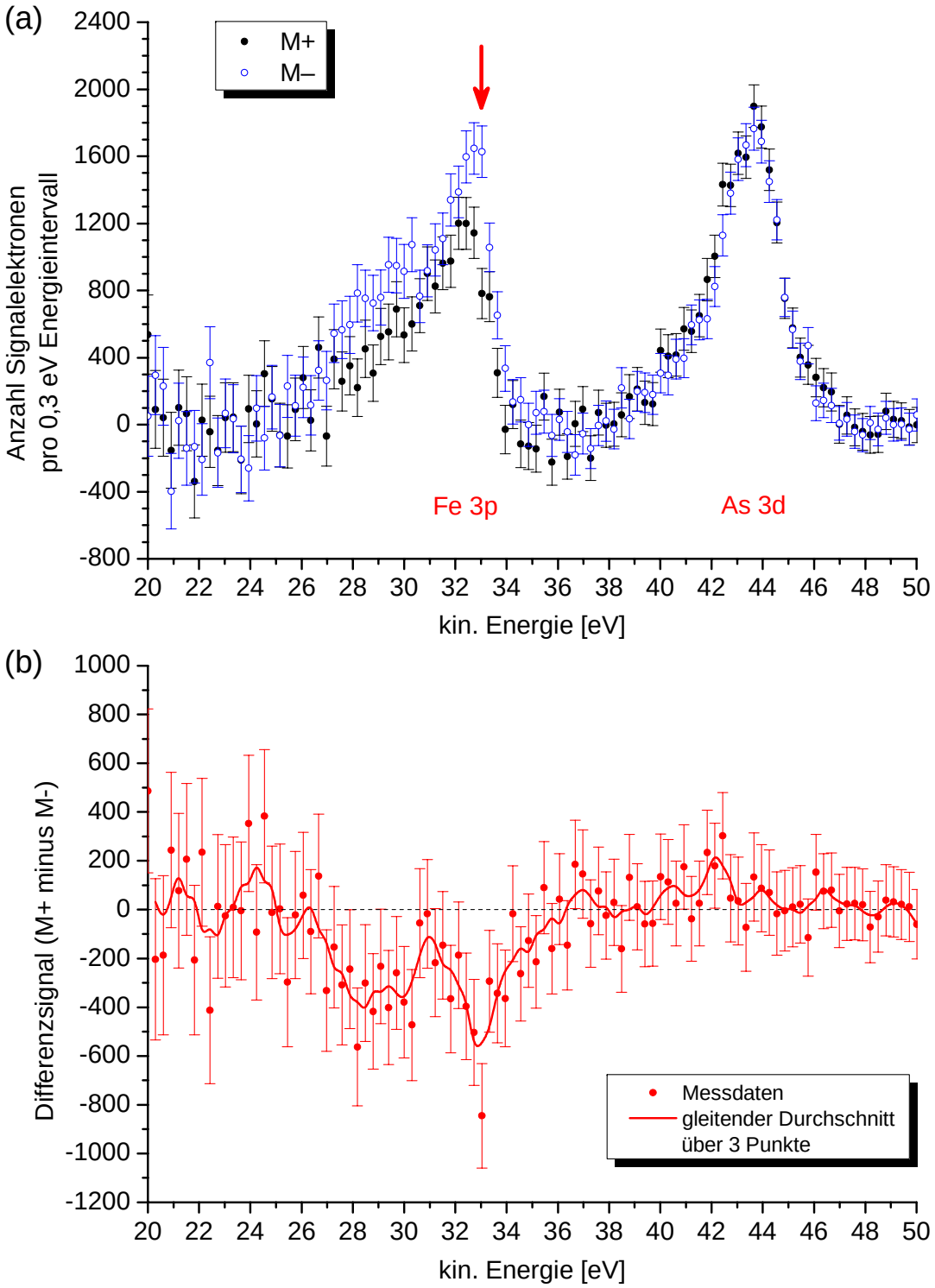


Abbildung 4.22: (a) Aus der Summation der Einzelmessungen resultierendes Photoemissionsspektrum von Fe/GaAs für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen $M+$ (schwarz) und $M-$ (blau). (b) Differenz der beiden Spektren aus (a). Die Fehlerbalken geben jeweils den statistischen Fehler an. Dargestellt ist hier lediglich der relevante Ausschnitt des Gesamtspektrums mit dem Fe 3p- und As 3d-Peak.

Um einen statistisch signifikanten Signalunterschied bei dem Fe 3p-Peak zu erhalten und Effekte aufgrund der makroskopischen Beschaffenheit der Eisen- und GaAs-Oberfläche herauszumitteln, wurden die an verschiedenen Tagen und Probenpositionen sowie mit unterschiedlichen GaAs-Substraten gemessenen Spektren jeweils für die zwei entgegengesetzten Magnetisierungsrichtungen $M+$ und $M-$ aufsummiert (eine Auswahl der Einzelspektren ist in Abb. 4.21 gezeigt). In Abbildung 4.22a sind die so ermittelten Summenspektren dargestellt, die in Übereinstimmung mit der Mehrheit der in der Literatur beschriebenen Messungen an Eisenatomen auf der hochenergetischen Seite des Peaks eine niedrigere Signalstärke für die nach oben gerichtete Magnetisierung $M+$ aufweisen [89–91, 93, 94, 99, 175]. Der Maximalwert des Dichroismussignals liegt bei einer kinetischen Energie der Photoelektronen von etwa 33 eV und ist mit dem roten Pfeil gekennzeichnet. Dagegen zeigt der As-Peak erwartungsgemäß keinen signifikanten Dichroismus nach Anwendung der gleichen Untergrundkorrektur. Außerdem beobachtet man beim Eisenpeak im Gegensatz zu der As-Linie eine Schwerpunktsverschiebung um 0, 2 eV bei Umkehrung der Magnetisierung. Der Einfluss des starken Sekundärelektronenuntergrunds zeigt sich zum einen in einigen negativen und damit unphysikalischen Werten für die Anzahl an Signalelektronen nach der Korrektur der Spektren und zum anderen in der Länge der Fehlerbalken. Bei einer untergrundfreien Messung würden die statistischen Fehler in Abbildung 4.22a nur im Mittel 14 % der hier unter Einbeziehung des Untergrunds berechneten Messunsicherheiten betragen. Der exponentielle Anstieg des Untergrunds mit der sich daraus ergebenden Vergrößerung der Fehlerbalken und die stark variierenden Signalwerte unterhalb von etwa 32 eV (siehe die Einzelspektren) lassen mögliche Unterschiede in diesem Teil des Spektrums weniger stark hervortreten. Das ist eine Ursache dafür, dass die in den Referenzmessungen detektierte Umkehrung der Signalstärken bei kleineren kinetischen Energien und damit eine Minus-Plus-Struktur gemäß Abbildung 2.9 hier lediglich in einigen Einzelspektren beobachtet werden kann, in der Differenz der aufsummierten Spektren aber nicht deutlich zu sehen ist (siehe Abbildung 4.22b), obwohl die Fehlerbalken bei den Signalwerten nahe 31 eV kinetischer Energie positive Werte zulassen. Der negative Peak unterhalb von 30 eV lässt sich durch Beiträge der magnetisierbaren Eisenoxide erklären, da eine chemische Verschiebung der Fe 3p-Linie bei FeO um ca. 1, 9 eV und insbesondere bei Fe_2O_3 um etwa 2, 7 eV sowie bei FeOOH um ca. 3, 6 eV hin zu höheren Bindungsenergien stattfindet [176]. Auch der Anteil der nächstniedrigeren Harmonischen, der 8–11 % der Hauptlinie gemäß Abbildung 4.18 ausmacht, führt zu einer um 3, 1 eV zu kleineren kinetischen Energien verschobenen Spektrallinie. Erwähnt werden sollen an dieser Stelle weitere Effekte, die das Dichroismussignal beeinflussen, im Rahmen dieser Arbeit aber nicht genauer untersucht werden konnten: Zu nennen ist erstens eine nicht vollständige Ausrichtung der Magnetisierung bzw. das von Sirotti und Rossi beobachtete Vorhandensein von 180°-Domänen [175]. Da die Ausdehnung der Domänen größer als die ausgeleuchtete Fokusfläche sein kann [97], lassen sich damit Unterschiede in den Einzelspektren erklären. Wie vor allem die Messungen von Bansmann *et al.* verdeutlichen, beeinflussen zweitens sowohl die Oberflächenstruktur – vergleiche z.B. das MLDAD-Signal einer

epitaktisch aufgewachsenen Schicht mit dem von Fe-Inseln – als auch die Energie der anregenden Photonen das Dichroismussignal [99,177,178], so dass die in der Literatur beschriebenen Messungen an Synchrotronstrahlungsquellen mit höheren Anregungsenergien sowie an sehr gut charakterisierten Oberflächen durchgeführt wurden. Für eine genauere Untersuchung des Einflusses der Oberflächenbeschaffenheit sind daher verbesserte Präparations- und Analysemethoden notwendig (Heizen des Substrats während des Aufdampfprozesses, Auger-Elektronen-Spektroskopie zur Detektion von Adsorbaten, LEED- oder RHEED-Messungen zur Bestimmung der Kristallstruktur und Oberflächenrekonstruktion). Um Anregungsenergien von etwa 120 eV zu erreichen, bei denen das Dichroismussignal maximal wird (siehe Kapitel 2.5.2), müssen höhere Laserintensitäten zur Verschiebung des Cut-offs der Harmonischen realisiert und der Gradienten-Multilagenspiegel ausgetauscht werden. Oberhalb der Si-Absorptionskante bei etwa 100 eV kann man aber zum einen nicht mehr auf die erprobte Materialkombination Mo/Si zurückgreifen[8], zum anderen bedeuten kürzere Wellenlängen auch höhere Anforderungen an die Schichtstruktur aufgrund der geringeren Periodendicke und der niedrigeren tolerablen Rauigkeitswerte.

Fehleranalyse MLDAD-Messung

Das geringe Signal-Untergrund-Verhältnis der Fe 3p-Linie sowie die niedrige Zählrate verlangen nach einer detaillierten Fehleranalyse, um die Signifikanz des gemessenen Dichroismussignals nachzuweisen. Wie die Rohdaten zeigen (schwarze Kurve für $M+$ bzw. blaue Kurve für $M-$ in Abb. 4.23), unterscheiden sich die beiden Spektren in der absolut gemessenen Anzahl der Elektronen pro Flugzeit- bzw. Energieintervall. Eine mögliche Ursache ist die sich mit der Zeit durch Drifts der XUV-Quelle ändernde Photonenzahl. Dieser Effekt wird zwar durch das alle fünf Minuten umgeschaltete Magnetfeld minimiert, kann bei Messzeiten über mehrere Stunden jedoch in einer leicht unterschiedlichen Elektronenanzahl resultieren. Insbesondere bei geringen kinetischen Energien der Elektronen unterhalb etwa $32,6$ eV (gestrichelte Linie) können die beiden Spektren aber nicht durch eine einfache Skalierung übereinandergelegt werden, wie die rote Kurve ($= 1,22 \cdot M+$) verdeutlicht, weil sich die Transmission des Spektrometers nach Anlegen des starken Magnetfeldpulses ändert. Trotz der Auswahl nicht magnetisierbarer Materialien[9] in unmittelbarer Nähe der Probe kann eine mögliche Magnetisierung anderer Bauteile wie z.B. der Lineartische, der Schrittmotoren oder einiger Schrauben die Elektronenbahnen beeinflussen, zumal auch die Eisenschicht selbst ein magnetisches Streufeld erzeugt. Um dieses Transmissionsverhalten zu berücksichtigen, wird zunächst bei beiden Spektren an die Untergrundbereiche 1 und 2 für die Eisen-Linie bzw. 2 und 3 für den Arsen-Peak separat eine Untergrundfunktion

[8] Eine für höhere Photonenenergien geeignete Materialkombination ist z.B. Ni/C. Damit können aber nicht die gleichen Reflektivitäten wie mit den Mo/Si-Multilagenspiegeln erreicht werden (siehe Ref. [116]).

[9] Der Probenhalter besteht aus dem nicht magnetisierbaren Edelstahl 1.4435, die Halterung aus PEEK und die TOF-Linsen aus Aluminium.

$U(M\pm)$ angepasst. Durch Multiplikation der Datenpunkte für die nach unten gerichtete Magnetisierung mit dem Faktor $U(M+)/U(M-)$ erhält man die bezüglich des Einflusses des Magnetfeldpulses auf die Spektrometereigenschaften korrigierte grüne Kurve. Die Differenz zwischen dem Spektrum $M+$ (schwarz) und dem korrigierten Spektrum $M-_{\text{korr}}$ (grün) ergibt dann das Dichroismussignal des Eisens in Abbildung 4.24.

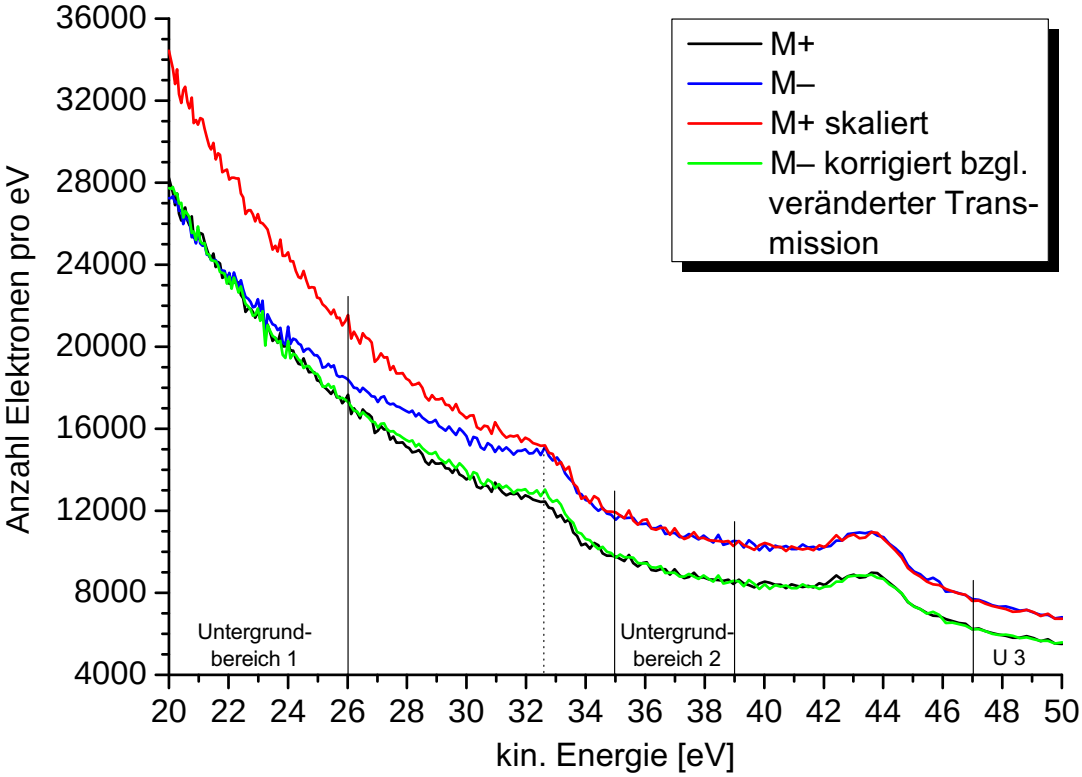


Abbildung 4.23: Rohdaten gemessen für entgegengesetzte Magnetisierungsrichtungen und korrigierte Spektren.

Bei diesem Signal gibt es unterschiedliche Quellen für Messunsicherheiten: Erstens ist hier der statistische Fehler zu nennen, der durch die Beziehung $\Delta M\pm = \sqrt{M\pm}$ bzw. $\Delta U(M\pm) = \sqrt{U(M\pm)}$ gegeben ist und sich für die korrigierten Datenpunkte mit Hilfe der Gaußschen Fehlerfortpflanzung bestimmen lässt. Die Elektronen werden zunächst in äquidistanten Zeitintervallen registriert, aus denen nach der Flugzeit-Energie-Konversion keine gleichen Energieintervalle resultieren. Deshalb wurde der betrachtete Energiebereich durch lineare Interpolation der Messdaten in 100 äquidistante Abschnitte unterteilt, so dass sich die Elektronenanzahl und die über die Fehlerbalken angegebene statistische Messunsicherheit jeweils auf ein konstantes Energieintervall von $0,3\,\text{eV}$ beziehen und damit vergleichbar sind. Hinzu kommen zweitens die systematischen Unsicherheiten aufgrund der Auswertungsmethode: Dass die Korrektur der Messdaten mit der Transmissionsfunktion $U(M+)/U(M-)$ gerechtfertigt ist, lässt sich anhand des As 3d-Referenzpeaks sowie der Untergrundbereiche neben den Peaks folgern, die erwartungsgemäß keinen signifikanten Dichroismus aufweisen. Die Signalstärke wird aber durch die Wahl der Untergrundfunk-

tion beeinflusst, wobei eine Exponentialfunktion den Untergrund im Bereich der Fe-Linie am besten beschreibt. Der reduzierte χ^2-Wert als Summe der quadratischen Abweichungen der Messpunkte von der Fitfunktion geteilt durch die Anzahl der Freiheitsgrade ist beim Vergleich mit anderen möglichen Untergrundfunktionen ein Maß für die Güte des Fits und beträgt für den exponentiellen Untergrund 53515, für ein Polynom dritten Grades 57474 und für eine Parabel bereits 89477, so dass letztere schon deutlich von den Messdaten abweicht. Die Differenz der Spektren nach Abzug eines kubischen Polynoms als Untergrund ist in Abbildung 4.24 im Vergleich zur Untergrundkorrektur mit einer Exponentialfunktion gezeigt und führt zu einem um 33 % reduzierten, aber immer noch signifikanten Dichroismussignal, bei dem die Minus-Plus-Struktur sogar deutlicher zutage tritt. Die für den Untergrundfit herangezogenen Energieintervalle sind so gewählt, dass sie nicht mit den Signalbereichen überlappen. Eine Verkleinerung dieser Intervalle würde aufgrund der reduzierten Anzahl an Datenpunkten die Ungenauigkeit der angepassten Untergrundfunktion erhöhen.

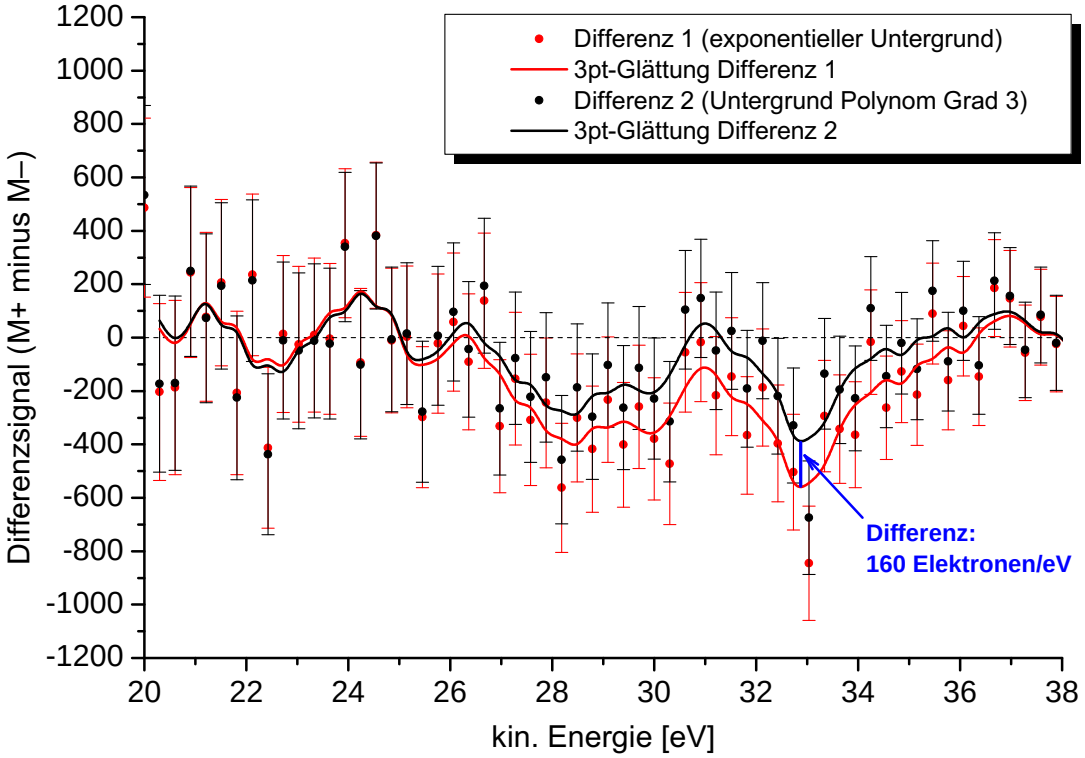


Abbildung 4.24: MLDAD-Differenzsignal für zwei verschiedene Untergrundfunktionen (rote Kurve: exponentieller Untergrund wie in Abb. 4.22; schwarze Kurve: Polynom dritten Grades als Untergrundfunktion).

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Neben der Implementierung einer rein optischen Methode zur Bestimmung der Magnetisierung unter Ausnutzung des nichtlinearen magneto-optischen Kerr-Effekts und damit durchgeführten Testmessungen an Permalloyfilmen wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Messapparatur für die Photoemissionsspektroskopie an (magnetisierten) Festkörperoberflächen realisiert. Der experimentelle Aufbau besteht zum einen aus einer XUV-Laborquelle, die auf der Erzeugung hoher Harmonischer durch die Fokussierung der Laserpulse eines kommerziell erhältlichen Femtosekundenlasersystems in ein mit Neon gefülltes Röhrchen basiert. Zum anderen wurde ein UHV-Rezipient mit den Möglichkeiten der Oberflächenreinigung, der In-situ-Präparation von remanent magnetisierten Eisenfilmen und der Detektion ortsaufgelöster Photoelektronenspektren konstruiert und aufgebaut. Sowohl die Fundamentale als auch die Harmonischenstrahlung wurden hinsichtlich der wesentlichen Eigenschaften charakterisiert (siehe Tab. 5.1) und bezüglich eines maximalen Photonenflusses im energetischen Transmissions- und räumlichen Akzeptanzbereich der Beamline optimiert. Die Eignung der Messapparatur für die Photoemissionsspektroskopie an Gasen wurde durch die Aufnahme eines Xenon-Spektrums und an Festkörperoberflächen durch die Messungen an GaAs- und Silizium-Wafern sowie an aufgedampften Eisenfilmen gezeigt. An den Festkörperproben können sowohl Valenzbandspektren aufgenommen als auch die Rumpfelektronen mit Bindungsenergien unterhalb von etwa 90 eV detektiert werden. Insbesondere konnte die magnetisierungsabhängige Änderung der Spektren aufgrund des magnetischen Lineardichroismus in der Winkelverteilung am System Fe/GaAs nachgewiesen werden, so dass diese Dissertation einen wesentlichen Schritt hin zu Messungen ultrakurzer Magnetisierungsdynamik an der Hohe-Harmonische-Quelle darstellt.

Obwohl die Funktionalität der Messapparatur mit den Experimenten gezeigt wurde, bieten sich folgende Aspekte zur Weiterentwicklung des Aufbaus an: Eine Möglichkeit, den Photonenfluss zu erhöhen und dadurch die Messzeiten zur Aufnahme der Photoelektronenspektren zu reduzieren, stellen die phasenrichtige Mischung der Fundamentalen mit der in einem Kristall generierten zweiten Harmonischen und die anschließende Erzeugung

Laserparameter	
Pulsenergie[a]	3 mJ
Pulsdauer[a]	30 fs
Repetitionsrate	975 Hz
Strahlbreite[b] (FWHM)	8 mm
Divergenz	$< 0,6$ mrad
M^2	≈ 2
Richtungsabweichung[c]	$< 0,4$ µrad rms
XUV-Quelle und HHG-Beamline	
Divergenz (vertikal)	< 1 mrad
Photonenfluss[d] (57. HH)	$8 \cdot 10^4$
Beamline-Transmission (57. HH)	10–15 %
Reflexionsbereich ML-Spiegel	73,4–93,7 eV (49.–59. HH)
Bandbreite ML-Spiegel	$2,4$ eV
Fokusgröße nach Ellipsoid (FWHM)	< 38 µm $\times$ 16 µm
Polarisation	linear, p-polarisiert

Tabelle 5.1: Zusammenstellung wichtiger Laserparameter sowie Eigenschaften der XUV-Quelle und HHG-Beamline. a: typische Werte, die abhängig von der Laserjustage und den Betriebsparametern der XUV-Quelle leicht variieren können; b: gemessen am Anfang der Beamline; c: gemessen mit Strahlstabilisierung; d: Anzahl Photonen pro Puls und 1 mrad Divergenz.

der hohen Harmonischen durch das resultierende elektrische Feld dar. Ein weiterer Ansatz zur Maximierung der Erzeugungseffizienz ist die Wahl einer Linse mit größerer Brennweite in Kombination mit einer längeren Gaszelle, was aufgrund des größeren Strahldurchmessers im Target jedoch höhere Laserleistungen voraussetzt. Durch den Einbau einer größeren fokussierenden XUV-Optik in die Spiegelkammer mit besserer Oberflächenqualität können der Akzeptanzwinkel und die Reflektivität gesteigert werden, so dass sich die XUV-Intensität auf der Probe erhöht. Höhere Laserintensitäten, die z.B. durch die Verkürzung der Pulslänge erreicht werden können, bewirken eine Ausdehnung des emittierten Harmonischenspektrums hin zu kleineren Wellenlängen, was für die Signalstärke des MLDAD-Effekts bei den Fe 3p-Elektronen von Vorteil ist. Zur Nutzung dieses Photonenenergiebereichs ist jedoch eine Anpassung der Beamline-Komponenten notwendig. Da das Beugungslimit für die XUV-Wellenlängen noch nicht erreicht ist, lässt sich die Fokusgröße durch eine Nachfokussierung mittels einer Zonenplatte reduzieren, so dass zukünftig die Untersuchung von magnetischen Nanostrukturen möglich wird. Die Energieauflösung des Flugzeitspektrometers kann durch die Verlängerung der Flugstrecke verbessert werden, um subtile Energieverschiebungen der Photolinien z.B. bei der Änderung der chemischen Umgebung des Atoms besser beobachten zu können. Außerdem ist eine Erweiterung der Präparations- und Charakterisierungsmöglichkeiten der Oberflächen wünschenswert. Da-

für kommen in der Präparationskammer eine Oberflächenanalyse mittels LEED, RHEED und Auger-Spektroskopie, eine in-situ Schichtdickemessung während des Aufdampfprozesses sowie eine Probenheizung in Frage.

Damit in Zukunft auch Anrege-Abfrage-Experimente zur Messung magnetischer Dynamik durchgeführt werden können, muss der 800 nm-Laserpuls nach der HHG-Kammer mit Hilfe eines zentral durchbohrten Spiegels ausgekoppelt werden, um die XUV-Strahlung nicht zu beeinflussen. Nach Durchlaufen einer variablen Verzögerungsstrecke zur Einstellung des zeitlichen Abstands zwischen Laser- und XUV-Puls wird er in der Experimentierkammer auf die Probe fokussiert werden. Die Anregung der magnetischen Dynamik kann dabei entweder rein optisch oder mit Hilfe eines durch den Laserpuls in einem Photoschalter ausgelösten Strompulses geschehen. Eine mögliche Erweiterung des Aufbaus ist die Integration der Messung des (nichtlinearen) magneto-optischen Kerr-Effekts in die Experimentierkammer zur In-Vakuum-Kontrolle der Hysterese und Sättigungsmagnetisierung der untersuchten magnetischen Systeme. Des Weiteren bietet die Messkammer hinsichtlich der Austrittsflansche genügend Flexibilität, um Untersuchungen des magnetischen Dichroismus in Reflexion oder Transmission der XUV-Strahlung durchzuführen. Die Transmissionsmessungen erfordern aber einen modifizierten Halter, auf dem die Proben senkrecht zum einfallenden Strahl positioniert werden können.

Anhang A

Alternatives Probenhalterdesign

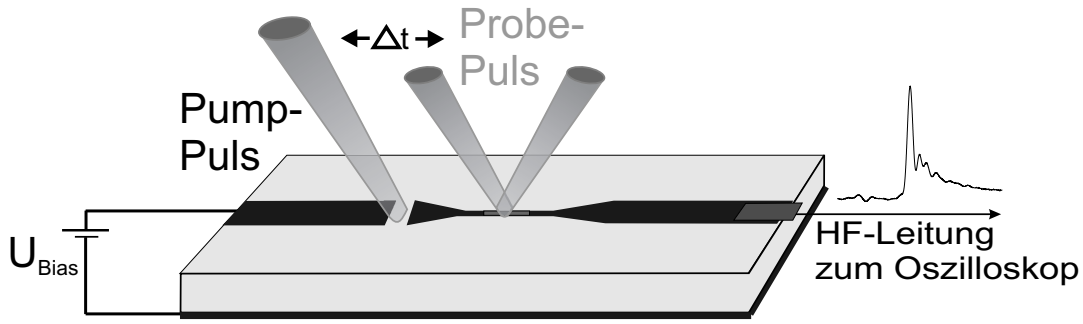


Abbildung A.1: Schematische Darstellung eines Pump-Probe-Experiments mit einem durch den Pumppuls ausgelösten Strom- bzw. Magnetfeldpuls, der die Streifenleitung entlangläuft. In einer auf der Verjüngung aufliegenden Probe wird durch den Magnetfeldpuls eine Magnetisierungsdynamik induziert, die durch Änderung des zeitlichen Abstands Δt zwischen Pump- und Probepuls zeitaufgelöst detektiert wird. Entnommen aus [179].

Die zeitliche Entwicklung von Magnetisierungsprozessen kann z.B. mit dem in Abbildung A.1 skizzierten Experiment untersucht werden. Durch Anregung mit einem Laserpuls werden in der photoleitenden Lücke der Streifenleitung Ladungsträger freigesetzt, die bei Anlegen einer Spannung die Leiterbahn entlangwandern. Der mit dem Stromfluss verbundene Magnetfeldpuls mit im Wesentlichen senkrecht zu der Streifenleitung verlaufenden Magnetfeldlinien regt in einer auf der Leiterbahn liegenden Probe eine Magnetisierungsdynamik an. Mit einem synchronisierten XUV-Probepuls kann unter Ausnutzung des MLDAD die momentane Ausrichtung des Magnetisierungsvektors bestimmt und deren Änderung durch die Variation des zeitlichen Abstands der beiden Pulse verfolgt werden. Für diese Art von Experimenten sind eine isolierte Anbringung der Probe auf dem Halter sowie eine Spannungszuführung und damit mindestens zwei elektrische Kontakte notwendig. Deshalb wurde im Rahmen dieser Arbeit ein im Vergleich zu dem komplett aus Edelstahl bestehenden Probenhalter modifiziertes Design entwickelt (siehe Abb. A.2). Die Probe wird auf die mit dem schwarz umrandeten Quadrat markierte Stelle auf dem Aluminiumnitrid-Keramikplättchen (Firma ANCeram) geklebt und z.B. mittels

Anbonden dünner Drähte mit den vergoldeten Flächen kontaktiert. Danach wird das Keramikplättchen mit zwei M2-Schrauben an den Grundkörper aus PEEK geschraubt. Die elektrische Verbindung der metallisierten Bereiche mit der Probenaufnahme des Scannertisches in der Experimentierkammer geschieht mit Hilfe von zwei an den Kontaktflächen ebenfalls vergoldeten und verdrehsicher an den Grundkörper montierten Federblechen.

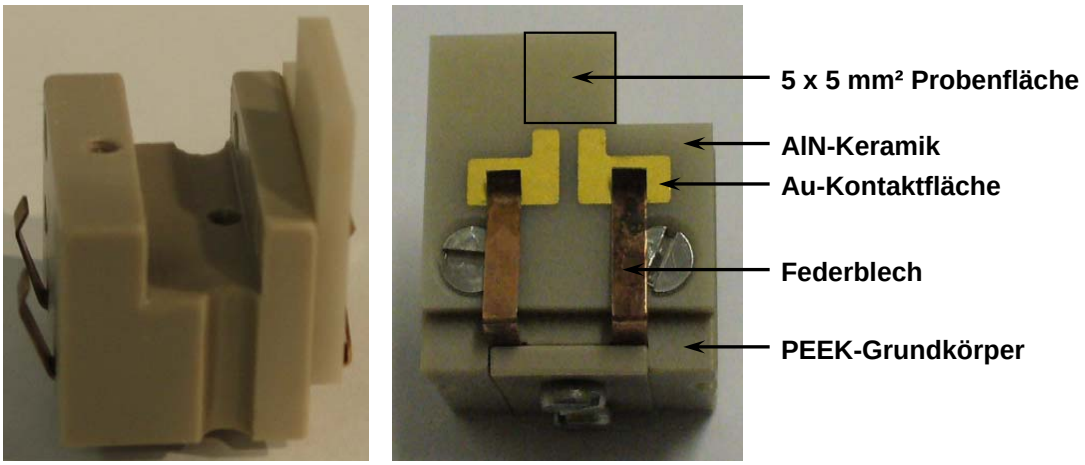


Abbildung A.2: Probenhalterdesign für Pump-Probe-Experimente mit Magnetfeldpulsen.

Literaturverzeichnis

[1] H. A. Dürr et al. *A Closer Look Into Magnetism: Opportunities With Synchrotron Radiation*, IEEE Transactions on Magnetics **45** (2009), S. 15–57.

[2] D. Attwood. *Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation, Principles and Applications.* Cambridge University Press, Cambridge, 1999.

[3] A. Einstein. *Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt*, Annalen der Physik **322** (1905), S. 132–148.

[4] J. Stöhr und H. C. Siegmann. *Magnetism From Fundamentals to Nanoscale Dynamics.* Springer Series in Solid-State Sciences 152. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2006.

[5] M. Drescher et al. *Applicability of monochromatized high harmonic extended ultraviolet radiaton for inner-shell photoelectron spectroscopy*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **127** (2002), S. 103–108.

[6] P. Šiffalovič. *Femtosecond Time-Resolved Photoelectron Spectroscopy in the Extreme Ultraviolet Region*, Doktorarbeit, Universität Bielefeld, 2002.

[7] M. Drescher et al. *X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier*, Science **291** (2001), S. 1923–1927.

[8] M. Hentschel et al. *Attosecond metrology*, Nature **414** (2001), S. 509–513.

[9] R. Kienberger et al. *Steering Attosecond Electron Wave Packets with Light*, Science **297** (2002), S. 1144–1148.

[10] E. Goulielmakis et al. *Direct Measurement of Light Waves*, Science **305** (2004), S. 1267–1269.

[11] R. Kienberger et al. *Atomic transient recorder*, Nature **427** (2004), S. 817–821.

[12] A. L. Cavalieri et al. *Attosecond spectroscopy in condensed matter*, Nature **449** (2007), S. 1029–1032.

[13] I. Tudosa et al. *The ultimate speed of magnetic switching in granular recording media*, Nature **428** (2004), S. 831–833.

[14] E. Beaurepaire et al. *Ultrafast Spin Dynamics in Ferromagnetic Nickel*, Physical Review Letters **76** (1996), S. 4250–4253.

[15] A. V. Kimel, A. Kirilyuk und T. Rasing. *Femtosecond opto-magnetism: ultrafast laser manipulation of magnetic materials*, Laser & Photonics Reviews **1** (2007), S. 275–287.

[16] J. Bigot, M. Vomir und E. Beaurepaire. *Coherent ultrafast magnetism induced by femtosecond laser pulses*, Nature Physics **5** (2009), S. 515–520.

[17] C. Stamm et al. *Femtosecond modification of electron localization and transfer of angular momentum in nickel*, Nature Materials **6** (2007), S. 740–743.

[18] L. Braicovich et al. *Femtosecond Dynamics in Ferromagnetic Metals Investigated with Soft X-Ray Resonant Emission*, Physical Review Letters **95** (2005), 267402.

[19] H.-S. Rhie, H. A. Dürr und W. Eberhardt. *Femtosecond Electron and Spin Dynamics in Ni/W(110) Films*, Physical Review Letters **90** (2003), 247201.

[20] Wikipedia-Artikel zu Gauß-Strahlen.
URL zur Grafik: *http://commons.wikimedia.org/wiki/File:Gaussian_beam_with_german_description.svg* [Stand: 29.04.2010].

[21] B. E. A. Saleh und M. C. Teich. *Fundamentals of Photonics.* John Wiley & Sons, New York, 1991.

[22] A. E. Siegman. *Lasers.* University Science Books, Sausalito, California, 1986.

[23] A. E. Siegman. *How to (Maybe) Measure Laser Beam Quality*, Tutorial presented at Optical Society of America Annual Meeting, Long Beach, California (Oktober 1997).

[24] R.-P. Pan, H. D. Wei und Y. R. Shen. *Optical second-harmonic generation from magnetized surfaces*, Physical Review B **39** (1989), S. 1229–1234.

[25] J. Reif et al. *Effects of Surface Magnetism on Optical Second Harmonic Generation*, Physical Review Letters **67** (1991), S. 2878–2881.

[26] M. Fiebig, V. V. Pavlov und R. V. Pisarev. *Second-harmonic generation as a tool for studying electronic and magnetic structures of crystals: review*, Journal of the Optical Society of America B **22** (2005), S. 96–118.

[27] K. Böhmer. *Nichtlineare Optik mit Ultrakurzen Laserpulsen: Frequenzverdopplung (SHG) an magnetisiertem Nickel*, Doktorarbeit, Freie Universität Berlin, 1994.

[28] K. H. Bennemann (Editor). *Nonlinear Optics in Metals.* International series of monographs on physics. Oxford University Press Inc., Oxford, 1998.

[29] T. J. Silva und T. M. Crawford. *Methods for Determination of Response Times of Magnetic Head Materials*, IEEE Transactions on Magnetics **35** (1999), S. 671–676.

[30] P. Kabos, A. B. Kos und T. J. Silva. *Vectorial second-harmonic magneto-optic Kerr effect measurements*, Journal of Applied Physics **87** (2000), S. 5980–5982.

[31] C. W. Teplin et al. *Complete measurement of the surface second-harmonic magneto-optical Kerr effect for permalloy films*, Physical Review B **69** (2004), 075415.

[32] J. Wildenauer. *Generation of the ninth, eleventh, and fifteenth harmonics of iodine laser radiation*, Journal of Applied Physics **62** (1987), S. 41–48.

[33] M. Ferray et al. *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **21** (1988), S. L31–L35.

[34] P. B. Corkum. *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization*, Physical Review Letters **71** (1993), S. 1994–1997.

[35] M. Wieland. *Entwicklung hochauflösender röntgenoptischer Verfahren für Hohe-Harmonische-Strahlung im extrem ultravioletten Spektralbereich*, Doktorarbeit, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn, 2004.

[36] J. L. Krause, K. J. Schafer und K. C. Kulander. *High-Order Harmonic Generation from Atoms and Ions in the High Intensity Regime*, Physical Review Letters **68** (1992), S. 3535–3538.

[37] L. V. Keldysh. *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Soviet Physics JETP **20** (1965), S. 1307–1314.

[38] A. C. Thompson et al. *X-Ray Data Booklet.* Lawrence Berkeley National Laboratory, University of California, Berkeley, 2001.

[39] M. V. Ammosov, M. B. Delone und V. P. Kraïnov. *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Soviet Physics JETP **64** (1986), S. 1191–1194.

[40] C. Ruillière. *Femtosecond Laser Pulses: principles and experiments.* Springer Science+Business Media, Inc., New York, 2. Auflage, 2005.

[41] K. C. Kulander. *Multiphoton ionization of hydrogen: A time-dependent theory*, Physical Review A **35** (1987), S. 445–447.

[42] C. J. Joachain, M. Dörr und N. Kylstra. *High-Intensity Laser-Atom Physics*, Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics **42** (2000), S. 225–286.

[43] G. Bandarage et al. *Harmonic generation by laser-driven classical hydrogen atoms*, Physical Review A **46** (1992), S. 380–390.

[44] A. L'Huillier et al. *High-order harmonic-generation cutoff*, Physical Review A **48** (1993), S. R3433–R3436.

[45] M. Lewenstein et al. *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*, Physical Review A **49** (1994), S. 2117–2132.

[46] W. Becker, S. Long und J. K. McIver. *Modeling harmonic generation by a zero-range potential*, Physical Review A **50** (1994), S. 1540–1560.

[47] M. Protopapas et al. *Recollisions, bremsstrahlung, and attosecond pulses from intense laser fields*, Physical Review A **53** (1996), S. R2933–R2936.

[48] T. Brabec (Editor). *Strong Field Laser Physics.* Springer Series in Optical Sciences 134. Springer Science+Business Media, LLC, New York, 2008.

[49] P. Balcou et al. *Generalized phase-matching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces*, Physical Review A **55** (1997), S. 3204–3210.

[50] P. Salières, A. L'Huillier und M. Lewenstein. *Coherence Control of High-Order Harmonics*, Physical Review Letters **74** (1995), S. 3776–3779.

[51] M. Lewenstein, P. Salières und A. L'Huillier. *Phase of the atomic polarization in high-order harmonic generation*, Physical Review A **52** (1995), S. 4747–4754.

[52] P. Antoine, A. L'Huillier und M. Lewenstein. *Attosecond Pulse Trains Using High-Order Harmonics*, Physical Review Letters **77** (1996), S. 1234–1237.

[53] P. Salières et al. *Study of the spatial and temporal coherence of high order harmonics*, Advances in Atomic, Molecular, and Optical Physics **41** (1999), S. 83–142.

[54] M. B. Gaarde, J. L. Tate und K. J. Schafer. *Macroscopic aspects of attosecond pulse generation*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **41** (2008), 132001.

[55] E. Constant et al. *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment*, Physical Review Letters **82** (1999), S. 1668–1671.

[56] X. He et al. *Spatial and spectral properties of the high-order harmonic emission in argon for seeding applications*, Physical Review A **79** (2009), S. 063829.

[57] P. Balcou et al. *Quantum-path analysis and phase matching of high-order harmonic generation and high-order frequency mixing processes in strong laser fields*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **32** (1999), S. 2973–2989.

[58] M. B. Gaarde und K. J. Schafer. *Quantum path distributions for high-order harmonics in rare gas atoms*, Physical Review A **65** (2002), 031406.

[59] J.-F. Hergott et al. *Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range*, Physical Review A **66** (2002), 021801.

[60] Z. Chang et al. *Temporal phase control of soft-x-ray harmonic emission*, Physical Review A **58** (1998), S. R30–R33.

[61] K. Varjú et al. *Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses*, Journal of Modern Optics **52** (2005), S. 379–394.

[62] D. G. Lee et al. *Coherent Control of High-Order Harmonics with Chirped Femtosecond Laser Pulses*, Physical Review Letters **87** (2001), 243902.

[63] J.-H. Kim und C. H. Nam. *Plasma-induced frequency chirp of intense femtosecond lasers and its role in shaping high-order harmonic spectral lines*, Physical Review A **65** (2002), 033801.

[64] H. T. Kim et al. *Chirp analysis of high-order harmonics from atoms driven by intense femtosecond laser pulses*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **37** (2004), S. 1141–1152.

[65] A. Rundquist et al. *Phase-Matched Generation of Coherent Soft X-rays*, Science **280** (1998), S. 1412–1415.

[66] E. A. Gibson et al. *Coherent Soft X-ray Generation in the Water Window with Quasi-Phase Matching*, Science **302** (2003), S. 95–98.

[67] G. P. Zhang. *High Harmonic Generation in Atoms, Molecules and Nanostructures*, International Journal of Modern Physics B **21** (2007), S. 5167–5185.

[68] I J. Kim et al. *Highly Efficient High-Harmonic Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field*, Physical Review Letters **94** (2005), 243901.

[69] P. Jaeglé. *Coherent Sources of XUV Radiation, Soft X-Ray Lasers and High-Order Harmonic Generation.* Springer Series in Optical Sciences. Springer Science+Business Media, Inc., New York, 2006.

[70] M. P. Seah und W. A. Dench. *Quantitative Electron Spectroscopy of Surfaces: A Standard Data Base for Electron Inelastic Mean Free Paths in Solids*, Surface and Interface Analysis **1** (1979), S. 2–11.

[71] S. Hüfner. *Photoelectron Spectroscopy.* Springer Series in Solid-State Sciences 82. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1995.

[72] C. N. Berglund und W. E. Spicer. *Photoemission Studies of Copper and Silver: Theory*, Physical Review **136** (1964), S. A1030–A1044.

[73] S. Doniach und M. Šunjić. *Many-electron singularity in X-ray photoemission and X-ray line spectra from metals*, Journal of Physics C: Solid State Physics **3** (1970), S. 285–291.

[74] W. J. Pardee et al. *Analysis of surface- and bulk-plasmon contributions to x-ray photoemission spectra*, Physical Review B **11** (1975), S. 3614–3616.

[75] D. A. Shirley. *High-Resolution X-Ray Photoemission Spectrum of the Valence Bands of Gold*, Physical Review B **5** (1972), S. 4709–4714.

[76] X. Li, Z. Zhang und V. E. Henrich. *Inelastic electron background function for ultraviolet photoelectron spectra*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **63** (1993), S. 253–265.

[77] S. Tougaard. *Low energy inelastic electron scattering properties of noble and transition metals*, Solid State Communications **61** (1987), S. 547–549.

[78] S. Tougaard. *Practical algorithm for background subtraction*, Surface Science **216** (1989), S. 343–360.

[79] S. Tougaard und C. Jansson. *Comparison of Validity and Consistency of Methods for Quantitative XPS Peak Analysis*, Surface and Interface Analysis **20** (1993), S. 1013–1046.

[80] D. Briggs und J. T. Grant (Editoren). *Surface Analysis by Auger and X-Ray Photoelectron Spectroscopy.* IM Publications and SurfaceSpectra Limited, Chichester and Manchester, 2003.

[81] L. Baumgarten et al. *Magnetic X-Ray Dichroism in Core-Level Photoemission from Ferromagnets*, Physical Review Letters **65** (1990), S. 492–495.

[82] Ch. Roth. *Spinpolarisation und magnetischer Dichroismus in winkelaufgelöster Rumpfniveau-Photoemission an Ferromagneten.* Fortschritt-Berichte VDI, Reihe 8: Meß-, Steuerungs- und Regelungstechnik, Nr. 430. VDI-Verlag GmbH, Düsseldorf, 1994.

[83] Ch. Roth et al. *Linear Magnetic Dichroism in Angular Resolved Fe 3p Core Level Photoemission*, Physical Review Letters **70** (1993), S. 3479–3482.

[84] J. G. Menchero. *One-electron theory of core-level photoemission from ferromagnets*, Physical Review B **57** (1998), S. 993–1000.

[85] J. G. Menchero. *Spin Polarization and Magnetic Dichroism in Core-Level Photoemission from Ferromagnets*, Doktorarbeit, Ernest Orlando Lawrence Berkeley National Laboratory, 1997.

[86] G. van der Laan. *Angular-resolved linear and circular dichroism in core-level photoemission of metallic systems*, Physical Review B **51** (1995), S. 240–249.

[87] G. van der Laan. *Magnitude of core-hole orbital moments from magnetic linear dichroism in the angular dependence of photoemission*, Physical Review B **55** (1997), S. 3656–3662.

[88] J. Henk, A. M. N. Niklasson und B. Johansson. *Multiple-scattering theoretical approach to magnetic dichroism and spin polarization in angle-resolved core-level photoemission*, Physical Review B **59** (1999), S. 13986–14000.

[89] J. G. Tobin und F. O. Schumann. *Element-specific magnetometry with photoelectron dichroism: FeCo and FeNi*, Surface Science **478** (2001), S. 211–228.

[90] C. Bethke. *Magnetischer Dichroismus in spin- und winkelaufgelöster Rumpfniveauphotoemission von Cr, Fe, Co und Ni*, Doktorarbeit, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2004.

[91] N. Janke-Gilman, M. Hochstrasser und R. F. Willis. *Measuring atomic moment and magnetic order through magnetic linear dichroism with angular dependence studies of transition-metal alloys*, Physical Review B **70** (2004), 184439.

[92] K. Okada et al. *Auger decay of quasiparticle states: Calculation of the Ni 3p photoemission spectrum in* $NiCl_2$, Physical Review B **47** (1993), S. 6203–6206.

[93] G. Panaccione, F. Sirotti und G. Rossi. *LMDAD as a Surface Magnetometry*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **76** (1995), S. 189–194.

[94] F. Sirotti, G. Panaccione und G. Rossi. *Atom-specific surface magnetometry*, Physical Review B **52** (1995), S. R17063–R17066.

[95] G. Panaccione et al. *Magnetic interface formation at Cr/Fe(100) and Fe/Cr/Fe(100): Magnetic dichroism in photoemission study*, Physical Review B **55** (1997), S. 389–396.

[96] M. Liberati et al. *Surface magnetometry with photoemission dichroism: Ultrathin epitaxial Fe-Co bcc alloys on Fe(100)*, Physical Review B **59** (1999), S. 4201–4206.

[97] W. Kuch et al. *Magnetic dichroisms in absorption and photoemission for magnetic characterization in x-ray photoelectron emission microscopy*, Journal of Vacuum Science & Technology B: Microelectronics and Nanometer Structures **20** (2002), S. 2543–2549.

[98] F. U. Hillebrecht et al. *Linear magnetic dichroism in photoemission*, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **148** (1995), S. 49–52.

[99] J. Bansmann et al. *Relationship between magnetic circular and linear dichroism in photoemission from Fe 3p core level: An experimental and theoretical investigation*, Physical Review B **60** (1999), S. 13860–13868.

[100] G. Panaccione, F. Sirotti und G. Rossi. *Surface vs. bulk magnetic moments from photoemission dichroism*, Solid State Communications **113** (2000), S. 373–377.

[101] F. U. Hillebrecht et al. *Photoelectron Diffraction in Magnetic Linear Dichroism*, Physical Review Letters **75** (1995), S. 2883–2886.

[102] A. Fanelsa et al. *Magnetic dichroism in core-level x-ray photoemission with unpolarized excitation*, Physical Review B **54** (1996), S. 17962–17965.

[103] R. Schellenberg et al. *Photoelectron diffraction: A source for magnetic dichroism in angle-resolved photoemission from ferromagnets*, Physical Review B **57** (1998), S. 14310–14318.

[104] A. Chassé. *Angular dependence of magnetic dichroism and spin polarization in angle-resolved core-level photoemission*, Journal of Physics: Condensed Matter **11** (1999), S. 6475–6486.

[105] N. A. Cherepkov. *Origin of magnetic dichroism in angular-resolved photoemission from ferromagnets*, Physical Review B **50** (1994), S. 13813–13816.

[106] A. Verweyen, A. N. Grum-Grzhimailo und N. M. Kabachnik. *Sum rules and spectral patterns of dichroism in inner-shell photoelectron spectra*, Physical Review A **60** (1999), S. 2076–2090.

[107] E. Tamura et al. *Linear and Circular Dichroism in Angle Resolved Fe 3p Photoemission*, Physical Review Letters **73** (1994), S. 1533–1536.

[108] D. Strickland und G. Mourou. *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications **56** (1985), S. 219–221.

[109] G. Cheriaux et al. *Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification*, Optics Letters **21** (1996), S. 414–416.

[110] C. Iaconis und I. A. Walmsley. *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses*, Optics Letters **23** (1998), S. 792–794, Siehe auch: *http://ultrafast.physics.ox.ac.uk/spider/index.html* [Stand: 29.04.2010].

[111] Umfangreiche Angaben zu Glasfiltern z.B. auf der Internetseite der Schott AG. URL: *http://www.schott.com* [Stand: 29.04.2010].

[112] B. L. Henke, E. M. Gullikson und J. C. Davis. *X-Ray Interactions: Photoabsorption, Scattering, Transmission, and Reflection at E=50-30,000 eV, Z=1-92*, Atomic Data and Nuclear Data Tables **54** (1993), S. 181–342.

[113] P. Kirkpatrick und A. V. Baez. *Formation of Optical Images by X-Rays*, Journal of the Optical Society of America **38** (1948), S. 766–774.

[114] A. G. Michette. *Optical systems for soft X rays.* Plenum Press, New York und London, 1986.

[115] A. V. Vinogradov und B. Y. Zeldovich. *X-Ray and far uv multilayer mirrors: principles and possibilities*, Applied Optics **16** (1977), S. 89–93.

[116] E. Spiller. *Soft X-Ray Optics.* Spie Optical Engineering Press, Bellingham, Washington, 1994.

[117] D. Maystre und R. Petit. *Quelques récents résultats en théorie des réseaux; application a leur utilisation dans l'extrême ultraviolet*, Nouvelle Revue d'Optique **7** (1976), S. 165–180.

[118] Proxitronic Treo GmbH, *Phosphor Screens.*
URL: *http://www.proxitronic.de/datasheets/PR-0053E-02-Phosphor_Screens.pdf*
[Stand: 29.04.2010].

[119] J. L. Wiza. *Microchannel Plate Detectors*, Nuclear Instruments and Methods **162** (1979), S. 587–601.

[120] Hamamatsu Photonics K.K., Electron Tube Division, *MCP & MCP Assembly Selection Guide.* URL: *http://jp.hamamatsu.com/resources/products/etd/pdf/MCPassy_TMCP0001E08.pdf* [Stand: 29.04.2010].

[121] T. Wilhein. *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendungen im Bereich weicher Röntgenstrahlung*, Doktorarbeit, Georg-August-Universität Göttingen, 1994.

[122] Princeton Instruments.
URL: *http://www.princetoninstruments.com/products/xraycam/pisx/*
[Stand: 29.04.2010].

[123] Die LabView-basierte Ansteuerungs- und Regelungssoftware wurde von Dipl.-Phys. Michael Schulz (Universität Hamburg) erstellt.

[124] L. Schroedter. *Design, Simulation and Operation of two Spectrometers for the Analysis of High Harmonic and Fluorescence Radiation in the Extreme Ultraviolet Spectral Range*, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 2009.

[125] Berechnet von Sergej Neb (Universität Bielefeld) mit dem Programm *Reflec* von F. Schäfers (BESSY mbH) und M. Krumrey (PTB), persönliche Mitteilung.

[126] Center for X-Ray Optics, X-Ray Interactions With Matter Calculator by E. Gullikson, URL: *http://henke.lbl.gov/optical_constants/* [Stand: 29.04.2010].

[127] Das HH-Meter wurde von Dipl.-Phys. Filip Budzyn (Universität Hamburg) konstruiert und aufgebaut.

[128] P. Rüdiger. *Setup, characterization and optimization of a high harmonic conversion cell for the generation of coherent EUV radiation*, Diplomarbeit, Universität Bielefeld, 2008.

[129] Der Ellipsoidspiegel wurde von Dipl.-Ing. Uwe Pein (Universität Hamburg) mit Gold bedampft.

[130] T. Klee. *Aufbau und Charakterisierung einer motorisierten in-Vakuum Mikrofokussierungseinheit für VUV-Strahlung*, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 2007.

[131] SIMION 3D Version 7.0, David A. Dahl, Idaho National Engineering and Environmental Laboratory, INEEL-95/0403, Formerly EGG-CS-7233, Rev. 5, February 2000, BECHTEL BWXT IDAHO, LLC.

[132] J. Cooper und R. N. Zare. *Angular Distribution of Photoelectrons*, Journal of Chemical Physics **48** (1968), S. 942–943.

[133] J. J. Yeh und I. Lindau. *Atomic Subshell Photoionization Cross Sections and Asymmetry Parameters: $1 \leq Z \leq 103$*, Atomic Data and Nuclear Data Tables **32** (1985), S. 1–155,
Siehe auch URL: *http://ulisse.elettra.trieste.it/services/elements/WebElements.html* [Stand: 29.04.2010].

[134] M. Cardona und L. Ley (Editoren). *Photoemission in Solids 1, General Principles.* Topics in Applied Physics 26. Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 1978.

[135] femm 4.0.1, Finite Element Method Magnetics, David Meeker, 2. April 2007.

[136] M. Schulz. *Charakterisierung und Optimierung ultrakurzer Laserpulse für das Seeden von FLASH*, Diplomarbeit, Universität Hamburg, 2010.

[137] A. V. Melnikov, J. Güdde und E. Matthias. *Demagnetization following optical excitation in nickel and permalloy films*, Applied Physics B: Lasers and Optics **74** (2002), S. 735–740.

[138] P. B. Johnson und R. W. Christy. *Optical Constants of the Noble Metals*, Physical Review B **6** (1972), S. 4370–4379.

[139] H. W. K. Tom et al. *Surface Studies by Optical Second-Harmonic Generation: The Adsorption of O_2, CO and Sodium on the Rh(111) Surface*, Physical Review Letters **52** (1984), S. 348–351.

[140] U. Vogt et al. *Single-optical-element soft-x-ray interferometry with a laser-plasma x-ray source*, Optics Letters **30** (2005), S. 2167–2169.

[141] P. Salières et al. *Spatial profiles of high-order harmonics generated by a femtosecond Cr:LiSAF laser*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **27** (1994), S. L217–L222.

[142] M. Nisoli et al. *The role of beam profile in high-order harmonic generation by few-optical-cycle pulses*, Applied Physics B: Lasers and Optics **74** (2002), S. S11–S15.

[143] M. Bellini, C. Corsi und M. C. Gambino. *Neutral depletion and beam defocusing in harmonic generation from strongly ionized media*, Physical Review A **64** (2001), 023411.

[144] D. G. Lee et al. *Generation of bright low-divergence high-order harmonics in a long gas jet*, Applied Physics Letters **81** (2002), S. 3726–3728.

[145] H. Dachraoui et al. *Interplay between absorption, dispersion and refraction in high-order harmonic generation*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **42** (2009), 175402.

[146] A. L'Huillier et al. *Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm*, Physical Review A **46** (1992), S. 2778–2790.

[147] M. Schnürer et al. *Absorption-Limited Generation of Coherent Ultrashort Soft-X-Ray Pulses*, Physical Review Letters **83** (1999), S. 722–725.

[148] C. Altucci et al. *Influence of atomic density in high-order harmonic generation*, Journal of the Optical Society of America B **13** (1996), S. 148–156.

[149] P. Balcou et al. *Optimizing high-order harmonic generation in strong fields*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **25** (1992), S. 4467–4485.

[150] C.-G. Wahlström et al. *High-order harmonic generation in rare gases with an intense short-pulse laser*, Physical Review A **48** (1993), S. 4709–4720.

[151] E. J. Takahashi, Y. Nabekawa und K. Midorikawa. *Low-divergence coherent soft x-ray source at 13 nm by high-order harmonics*, Applied Physics Letters **84** (2004), S. 4–6.

[152] L. Le Déroff, P. Salières und B. Carré. *Beam-quality measurement of a focused high-order harmonic beam*, Optics Letters **23** (1998), S. 1544–1546.

[153] M. Schnürer et al. *Few-cycle-driven XUV laser harmonics: generation and focusing*, Applied Physics B **70** (2000), S. S227–S232.

[154] S. Kazamias et al. *Optimization of the focused flux of high harmonics*, The European Physical Journal D **26** (2003), S. 47–50.

[155] C. Valentin et al. *Imaging and quality assessment of high-harmonic focal spots*, Optics Letters **28** (2003), S. 1049–1051.

[156] H. Redlin. *Berechnung der Kristalle zur Erzeugung der dritten Harmonischen des PP Lasers*, Interner Bericht, Hasylab/DESY.

[157] Lexikon der Physik.
URL: *http://www.wissenschaft-online.de/abo/lexikon/physik/1067*
[Stand: 29.04.2010].

[158] ZEMAX-EE Optical Design Program, Version 15. Oktober 2007, ZEMAX Development Corporation.

[159] L. O. Werme, T. Bergmark und K. Siegbahn. *The High Resolution $L_{2,3}MM$ and $M_{4,5}NN$ Auger Spectra from Krypton and $M_{4,5}NN$ and $N_{4,5}OO$ Auger Spectra from Xenon*, Physica Scripta **6** (1972), S. 141–150.

[160] A. Ausmees et al. *High-resolution study of the Xe $4d_{5/2}$:$4d_{3/2}$ branching ratio*, Physical Review A **51** (1995), S. 855–858.

[161] FitXPS Version 2.12, David L. Adams, Institute of Physics and Astronomy, University of Aarhus, Denmark, 3. Dezember 2001.

[162] F. Stietz et al. *Core-level photoemission study of hydrogenated GaAs(100) surfaces*, Solid State Communications **94** (1995), S. 643–647.

[163] J. J. Joyce, M. Del Giudice und J. H. Weaver. *Quantitative analysis of synchrotron radiation photoemission core level data*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **49** (1989), S. 31–45.

[164] G. Le Lay et al. *High-resolution synchrotron-radiation core-level spectroscopy of decapped GaAs(100) surfaces*, Physical Review B **43** (1991), S. 14301–14304.

[165] M. Petravic et al. *High-resolution photoemission study of hydrogen interaction with polar and nonpolar GaAs surfaces*, Physical Review B **67** (2003), 195325.

[166] L. Ley et al. *X-Ray Photoemission Spectra of Crystalline and Amorphous Si and Ge Valence Bands*, Physical Review Letters **29** (1972), S. 1088–1092.

[167] T. L. Barr. *An XPS study of Si as it occurs in adsorbents, catalysts, and thin films*, Applications of Surface Science **15** (1983), S. 1–35.

[168] C. S. Wang und B. M. Klein. *First-principles electronic structure of Si, Ge, GaP, GaAs, ZnS, and ZnSe*, Physical Review B **24** (1981), S. 3393–3416.

[169] M. W. Ruckman, J. J. Joyce und J. H. Weaver. *Interdiffusion and reaction at the Fe/GaAs(110) interface*, Physical Review B **33** (1986), S. 7029–7035.

[170] S. A. Chambers et al. *Simultaneous epitaxy and substrate out-diffusion at a metal-semiconductor interface: Fe/GaAs(001)-c(8×2)*, Physical Review B **34** (1986), S. 6605–6611.

[171] T. L. Monchesky et al. *Magnetoresistance and magnetic properties of Fe/Cu/Fe/GaAs(100)*, Physical Review B **60** (1999), S. 10242–10251.

[172] G. Wastlbauer und J. A. C. Bland. *Structural and magnetic properties of ultrathin epitaxial Fe films on GaAs(001) and related semiconductor substrates*, Advances in Physics **54** (2005), S. 137–219.

[173] I. I. Pronin et al. *Magnetic Linear Dichroism in Photoemission from an Ultrathin Iron Silicide Film*, Physics of the Solid State **50** (2008), S. 553–556.

[174] C. Ruby und J. Fusy. *Oxidation of ultrathin iron layers grown on Cu(111)*, Applied Surface Science **99** (1996), S. 393–400.

[175] F. Sirotti und G. Rossi. *Magnetic asymmetry in photoemission from Fe(100) with linearly polarized synchrotron radiation*, Physical Review B **49** (1994), S. 15682–15687.

[176] N. S. McIntyre und D. G. Zetaruk. *X-ray Photoelectron Spectroscopic Studies of Iron Oxides*, Analytical Chemistry **49** (1977), S. 1521–1529.

[177] J. Bansmann et al. *Iron islands and dots on W(110) studied with polarized synchrotron radiation*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **106** (2000), S. 221–232.

[178] J. Bansmann. *Surface magnetism of iron and cobalt on W(110) probed with polarized synchrotron radiation*, Applied Physics A **72** (2001), S. 447–453.

[179] T. Korn. *Zeitaufgelöste Magnetisierungsmessungen an ferromagnetischen Filmen und Mikrostrukturen*, Doktorarbeit, Universität Hamburg, 2004.

Abkürzungen

Abkürzung	Erklärung
a.u.	willkürliche Einheiten (bei Achsenbeschriftungen) engl. *arbitrary units*
CCD	charge-coupled device
FWHM	volle Halbwertsbreite, engl. *full width at half maximum*
HH(G)	(Erzeugung) hohe(r) Harmonische(r) engl. *high harmonic (generation)*
LEED	Beugung niederenergetischer Elektronen an Oberflächen engl. *low energy electron diffraction*
MCP	Multichannelplate
RHEED	Beugung hochenergetischer Elektronen bei Reflexion engl. *reflection high energy electron diffraction*
SH(G)	(Erzeugung der) zweite(n) Harmonische(n) engl. *second harmonic (generation)*
TOF	Flugzeitspektrometer, engl. *time-of-flight spectrometer*
(U)HV	(Ultra)Hochvakuum
UPS	Photoemissionsspektroskopie mit ultraviolettem Licht engl. *ultra-violet photoemission spectroscopy*
(X)MLDAD	Linearer magnetischer Röntgendichroismus in der Winkelverteilung, engl. *(x-ray) magnetic linear dichroism in the angular distribution [or in the angular dependence]*, in der Literatur häufig auch mit LMDAD abgekürzt
XPS	Röntgeninduzierte Photoemissionsspektroskopie engl. *x-ray photoemission spectroscopy*
(X)UV	(extrem) ultraviolette Strahlung

Danksagung

Zunächst einmal bedanke ich mich bei Prof. Dr. Markus Drescher für die sehr gute Betreuung dieses interessanten Dissertationsthemas. Er hatte stets ein offenes Ohr für Fragen und Probleme und immer passende Antworten bzw. Lösungsvorschläge parat.

Insbesondere danke ich auch

- PD Dr. Michael Martins dafür, dass er sich bereit erklärt hat, meine Arbeit als Zweitgutachter zu lesen und zu bewerten,
- Prof. Dr. Wolfgang Hansen für die Begutachtung meiner Disputation,
- Dr. Marek Wieland für die Beantwortung vieler Fragen bezüglich der Harmonischenerzeugung und Handhabung der XUV-Strahlung, die Hilfe bei den Experimenten und das Korrekturlesen dieser Arbeit,
- Dr. Armin Azima für die Unterstützung bei der Laserjustage und sämtlichen anderen Laserproblemen,
- Dr. Maria Krikunova für die Hilfe bei der Konstruktion und dem Aufbau des Flugzeitspektrometers,
- Dr. Theophilos Maltezopoulos für die Unterstützung beim Einrichten der Kameras und das Korrekturlesen meiner Arbeit,
- Dr. Ulrike Frühling für die Hilfe bezüglich der Simulationsprogramme und ebenfalls für das Korrekturlesen sowie
- Dipl.-Phys. Bernd Schütte für die Mitarbeit bei einigen Messungen an der Hohe-Harmonische-Quelle.

Darüber hinausgehend bedanke ich mich bei allen DynamiX-Kolleginnen und -Kollegen für die nette Arbeitsatmosphäre und die anregenden Diskussionen auch über nichtphysikalische Themen z.B. beim Mittagessen.

In den Aufbau des Experiments sind maßgeblich die folgenden, im Rahmen von vier Diplomarbeiten getätigten Arbeiten eingeflossen:

- Dipl.-Phys. Lasse Schroedter hat die Spektrometerkammer mit dem XUV-Spektrometer konstruiert und aufgebaut.
- Dipl.-Phys. Patrick Rüdiger war für den Aufbau der HHG- und Fokussierkammer mit dem Gaseinlass verantwortlich und hat erste Charakterisierungsmessungen der XUV-Quelle mit Argon als Erzeugungsmedium durchgeführt.
- Dipl.-Phys. Thomas Klee hat die motorisierten Lineartischantriebe aufgebaut und getestet. Außerdem hat er den Ellipsoidspiegel im sichtbaren Spektralbereich charakterisiert und bei den Reflektivitätsmessungen mitgearbeitet.
- Dipl.-Phys. Michael Schulz hat die LabView-basierte Ansteuerungs- und Regelsoftware für die Strahlstabilisierung angefertigt.

Vielen Dank dafür!

Des Weiteren gilt mein Dank den Kooperationspartnern der AG Heitmann vom Institut für Angewandte Physik der Universität Hamburg. Zu nennen sind hier

- Dipl.-Phys. Sebastian Mansfeld, der die Präparation der strukturierten Testobjekte übernommen und uns die konfektionierten GaAs-Substrate zur Verfügung gestellt hat,
- Dr. Andreas Krohn, der die Permalloyfilme präpariert hat, sowie
- Dr. Stefan Mendach, dem ich ebenso wie den beiden anderen Kollegen für die fruchtbaren Diskussionen über das Probentransfersystem und die Messungen an magnetischen Systemen danke.

Da ein wesentlicher Teil der Arbeit in der Konstruktion von mechanischen und elektronischen Bauteilen bestand, wäre die Fertigstellung nicht ohne die Hilfe von folgenden Personen möglich gewesen:

- Wolfgang Gärtner danke ich für die Hilfe bei der Gestellkonstruktion und die kompetente Beratung bei allen sonstigen Konstruktionsproblemen,
- Benno Frensche und Jutta Pelz für die Konstruktion und die technischen Zeichnungen des Probentransfersystems,
- Oliver Becker für seine helfende Hand und seine Ratschläge bei vielen technischen Problemen sowie
- Jürgen Schütt für die Entwicklung der elektronischen Schaltung für das gepulste Magnetfeld, der Ansteuerung und Temperaturüberwachung der Schrittmotoren sowie für die Beratung bei diversen Fragen zur Elektronik.

Für die Fertigung der Bauteile waren die mechanische Werkstatt unter der Leitung von Stephan Fleig und die Elektronikwerkstatt unter der Leitung von Armin Spikofsky verantwortlich, deren Arbeit ich an dieser Stelle ausdrücklich hervorheben möchte. Danke für die gute Zusammenarbeit!

Zu guter Letzt danke ich meiner Familie und hier insbesondere meiner Freundin Nina Thieme, die die Arbeit auch hinsichtlich Rechtschreib- und Grammatikfehlern überprüft hat, sowie meinen Eltern Martha und Peter Kalms für die moralische Unterstützung und Aufmunterung, wenn es mit dem Experimentieren nicht wie gewünscht voranging.

Das Experiment wurde im Rahmen des von der Deutschen Forschungsgemeinschaft finanzierten Sonderforschungsbereichs 668 „Magnetismus vom Einzelatom zur Nanostruktur“ aufgebaut.

Vielen Dank an alle, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben!